

## 粉末特性評価試験－その2

1993年8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

Inquires 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)  
2000

(S)

社内資料  
PNC TN8440 93-026  
1993年8月

## 粉末特性評価試験－その2

実施責任者 上村勝一郎\*

報告者 大代 操\* 大沼 紀彦\*\* 高橋 邦明\*  
河野 秀作\* 山本 純太\*

### 要旨

本試験は前回の「粉末特性評価試験－その1」において、測定精度と測定条件を確立した装置（粒子密度、粒径・粒度分布および比表面積）で実施したものであり、今回はペレット製造時に原料粉となる粉末を試験試料とし、各原料粉の粉末特性を把握する目的で実施し、得られた各々の粉末特性の関連性についても検討した。

測定した粒子密度については、SEM写真像を観察すると粒子の形状および粒径が異なっているにもかかわらず、その試料の理論密度と比較して大きな差がないことより、密度は粒子の形状等に影響されなく、物質固有の密度を測定しているとみなされる。各粉末のSEM写真像では、その粉末の一次粒子については球形に近い形あるいは棒状・板状であるが、二次粒子（凝集体）は数 $\mu\text{m}$ ～数十 $\mu\text{m}$ 、形状は多数の一次粒子で形成している二次粒子がダンゴ状の形状をとるものから、数個がより集まつた多角形状のものというように、試料ごとに複雑な形状をとっているものが多かった。特にダンゴ状の粒子を持つ試料の粒度分布から算出した体面積平均径は他のものと比べて、2桁も値が大きく比表面積径との差が非常に大きかった。このことは、粒子を構成している一次粒子の数が多いことを示していると推定される。比表面積に関しては、その値とSEM写真像からの粒子の複雑さとは必ずしも一致していないなかつた。以上により、核燃料に用いている原料粉は、同じ物質でも製法によりその特性が異なることが再確認された。

\* 核燃料技術開発部 プロトコム燃料開発室

\*\* 檢査開発株式会社

## 目 次

1. はじめに .....	1
2. 試験方法 .....	1
2-1 試験項目 .....	1
2-2 標準試料 .....	1
2-3 使用装置 .....	1
2-4 試験方法 .....	2
3. 試験結果および考察 .....	3
3-1 SEM写真像観察結果 .....	4
3-2 密度測定結果 .....	7
3-3 比表面積測定結果 .....	9
3-4 粒度分布測定結果 .....	11
4. まとめ .....	16
5. 謝 辞 .....	18

## 1. はじめに

前回、物性値既知の標準試料を用い、粒子密度、比表面積および粒径・粒度分布測定試験に使用する装置の精度、測定誤差の確認および試験条件の確立を目的として、「粉末特性評価試験－その1」を実施した。

本試験では、燃料ペレットを製造する際の原料粉末を試験試料とし、各原料粉末の特性を把握し、プル工場で得られた上記の粉末特性値と本試験で得られた特性値とを比較・検討することを目的とし、原料粉末の物性値と最終製品である燃料ペレットの焼結密度との因果関係を把握することを最終目的とした試験の第一段階のものとして実施する。

## 2. 試験方法

### 2-1 試験項目

本試験で実施した試験項目は、前回実施した「粉末特性評価試験－その1」と同様にSEM写真像観察、粒子密度測定、比表面積測定および粒度分布測定である。

### 2-2 試験試料

本試験で使用した試料は、プル開室(R-125)にてペレット製造する際の原料粉からCOGEMA製、BNFL製といった製法の異なる原料粉を選定した。

下記に用いた試料を示す。また、各試料の詳細については付録1に示す。

P<sub>u</sub>O<sub>2</sub>粉に関して·····P-1 (COGEMA製P<sub>u</sub>O<sub>2</sub>)

P-2 (BNFL製P<sub>u</sub>O<sub>2</sub>)

UO<sub>2</sub>粉に関して·····U-1 (12%EUO<sub>2</sub>)

U-2 (26.5%EUO<sub>2</sub>)

U-3 (DUO<sub>2</sub>原料粉)

U-4 (NUO<sub>2</sub>(FC3-11))

MOX粉に関して·····M-1 (湿式回収粉)

M-2 (1:1 MOX)

### 2-3 試験装置

各試験に使用した装置を以下に示す。

#### 2-3-1 SEM写真像観察装置

日立製作所製、S-800（倍率；～300,000倍）

### 2-3-2 密度測定装置

島津製作所製、気体容積法、オートピクノメータ 1320

### 2-3-3 比表面積測定装置

島津製作所製、流動法、フローソーブ 2300

### 2-3-4 粒度分布測定試験

島津製作所製、レーザ回折法、SALD-1000

## 2-4 試験方法

各試験の試験方法を以下に示す。

### 2-4-1 SEM写真像観察

- ① 蒸留水20mlを入れた100mlビーカーに試料を採取し、攪拌する。なお、試料は次に示した条件にて攪拌する。（超音波照射時間（超音波による試料分散時間）；試料毎に異なるが、詳細はSEM写真像観察の図中に示してある。）
- ② 試料が分散している溶液からスポットを用いて約1ml取り試料台にのせ、室温で乾燥させる。
- ③ 導電性を持たせるため、蒸着装置により白金蒸着を行い、SEM装置により観察した。

### 2-4-2 密度測定

- ① ステンレス製予備サンプルカップに入れた試料（試料の量は15～16cc）をマントルヒーターにて温度150°C、乾燥時間60分の条件にて、試料の脱ガスを行う。その後、試料を秤量する。
- ② ブランク補正（空の状態の試料室の体積を測定）を行う。
- ③ 試料の入ったサンプルカップを試料室へ設置する。
- ④ 試料重量値、試料排気時間（5分間）を設定し、密度測定を行う。なお、密度測定は自動測定にて行われ測定後、測定値（密度）が表示される。
- ⑤ 再び、密度測定を行う。表示された密度を記録する。

#### 2 - 4 - 3 比表面積測定

比表面積測定方法には、 BET 1 点法およびBET多点法の 2 種類の方法があるが、 前回実施した「粉末特性評価試験－その 1」にて、 BET多点法での測定値が標準試料の公称値により一致していたため、 本試験ではBET多点法を採用することにした。

- ① 試料を試料セルの容積の約1/3程度（約 1 CC）まで入れる。
- ② 試料の入った試料セルを乾燥・秤量する。
- ③ 5%窒素と95%ヘリウムの混合ガスを用いて測定を行い、 表示された値を記録する。
- ④ 12%窒素と88%ヘリウムの混合ガスを用いて測定を行い、 表示された値を記録する。
- ⑤ 18%窒素と82%ヘリウムの混合ガスを用いて測定を行い、 表示された値を記録する。
- ⑥ 24%窒素と76%ヘリウムの混合ガスを用いて測定を行い、 表示された値を記録する。
- ⑦ 窒素混合比率を変化させた時に得られた測定値を用いてBETプロット図を求め、 X軸の値（ガス比率）が0.1～0.2の範囲での直線の傾きと切片から試料の比表面積を算出する。

#### 2 - 4 - 4 粒度分布測定

- ① 試料をステンレス製ビーカーに入れ攪拌（超音波照射時間；試料毎に異なるが、 詳細は粒度分布結果の図中に示してある。）しながら、 測定可能粒子量になるまで試料を追加していく。
- ② 測定可能粒子量で測定が自動的に開始される。
- ③ 測定データはコンピューターシステムにより演算処理され、 解析を行う。  
(尚、 測定回数は各試料とも 3 回とする。)

### 3. 試験結果および考察

各試験項目で得られた結果を以下に示す。

### 3 - 1 SEM写真像観察結果

各試料のSEM写真像をそれぞれ図1～図8に示す。

なお、各SEM写真像は、粒度分布測定との結果と合わせるため、粒度分布測定の際の超音波照射と同様な時間を照射したものである。

また、以降簡略のために、本測定の結果では、球状あるいは立方形状等の粒状に個々に分かれていると観察できる最小単位粒子を一次粒子、一次粒子の2個以上が集合しており球状とかの形状に認識できるものを二次粒子と定義する。例を図9に示す。

#### ① U-1 (図1参照)

- ・一次粒子を観察すると、針状で均一化しており、平均的な大きさは約0.5～1.0  $\mu\text{m}$ である。
- ・二次粒子については、球状粒が複数個集まった塊状で、一次粒子の様に全体的に均一化しており、外径は約10  $\mu\text{m}$ 程度である。また、このような特徴を示すのは、JCO（日本核燃料コンバージョン）製のADU法によって製造された粉末独自のものである。
- ・超音波照射については、照射時間を長くするに従って、視野領域内の二次粒子の密度が極端に小さくなり、凝集体を形成していない二次粒子（大きさは約1  $\mu\text{m}$ 程度）が目立つようになっているのが認められる。しかし、超音波照射時間を極端に長くすると、二次粒子の再凝集が起こり、大きな凝集体を生成していることが観察される。

#### ② U-2 (図2参照)

- ・一次粒子の形状に関しては、球状を基にした複雑な形しており、一次粒子の判別は困難である。大きさについては、約0.1～1.0  $\mu\text{m}$ の範囲で多岐にわたり分布している。
- ・二次粒子については、一次粒子と同様に均一的な形状をしているものがなく複雑であり、定性的に表現できないものが多い。大きさについては、～15  $\mu\text{m}$ 程度までの範囲で様々であった。
- ・超音波照射の効果については、照射時間40m位から大きな凝集体の分散が顕著に現れることが認められる。

- S E M写真像を全体的に観察すると、他の試料に比べ（試料番号P-1を除く）粉末の“顔”がゴツゴツしており、硬そうである。
- この試料は、A U C法によって製造された粉末であり、A U C法によって製造されたU O<sub>2</sub>粉末は、一般に、適度の活性を有し、更に粉碎等の処理を行う必要はないと言われている。本試験のS E M写真を観察すると一次粒子が他の試料と比べ小さいことより焼結性が良いと推定され、上記のことが言える。

#### ③ U-3 (図3参照)

- 一次粒子は約0.3~0.6 μmの球状で、各試料の中で一番均一化していることが観察される。また、この試料と同様な製法（A D U法）での試料番号U-1についての一次粒子は針状である。一般に、焼結が進行すると、粒子は球状に近くなることが知られていることから、試料番号U-1よりもこの試料の方が製造条件における仮焼温度が高いと推定される。
- 二次粒子に関しては、一次粒子が無数に凝集した塊状のもので大きさは約10~30 μmであり、試料番号U-1と同様に最も簡単な形状をしていることが認められる。
- 超音波照射についても、試料番号U-1と全く同じ傾向が認められ、分散した二次粒子の形状は多岐にわっている。

#### ④ U-4 (図4参照)

- 一次粒子については、試料番号U-3に類似しており、平均的な大きさが約0.1~0.5 μmである。しかし、大きな（約5.0 μm程度）片状粒子も含まれているのが観察される。この試料は、試料番号U-3と同じ製法によって得られたものであるが、製造最終段階で粉碎処理を行っている。このため、試料番号U-1およびU-3と比べて、二次粒子表面の輪郭がはっきりとせず、はがれやすくなっているようである。また、大きな片状粒子が混在するのは、この粉碎処理中に生成されたものであると考えられる。
- 二次粒子の凝集体については、形状が試料番号U-3に類似しており大きさは、超音波照射をしなくとも4~20 μmの範囲で大きな粒径に偏った分布をしている。

- ・超音波照射後の凝集体の形状を観察すると、試料番号U-3と比較して輪郭がなめらかでなく、ボロボロと崩れたようにみえる。従って、試料番号U-3よりも“もろい”粉末であると思われる。

⑤ P-1 (図5参照)

- ・一次粒子あるいは二次粒子ともに各試料の中で一番特徴的な形状（一边が5 $\mu\text{m}$ 程度の板状）を有している。また、同じ蔥酸沈殿法によって得られた試料番号P-2とは全く異なる粉末形態をしている。これは、蔥酸沈殿法のプロセスにおける試料調整（蔥酸プルトニウムを生成・沈殿させる温度あるいは蔥酸プルトニウムの熟成時間）の違いによるものと考えられる。また、ゆっくりと沈殿させると結晶成長が促進されることとなり、この試料はこのように生成されたことも考えられる。
- ・二次粒子については、一次粒子が層状に重なったりして、多角形状の形態を有している。
- ・超音波照射に関しては、他の試料のように二次粒子群が一次粒子あるいは小さな二次粒子に分散するのではなく、超音波を長時間照射すると一次粒子の角が丸みを帯びていることから、表面の粒子どうしの接触より崩れると考えられる。

⑥ P-2 (図6参照)

- ・一次粒子は、0.5 $\mu\text{m}$ 以下の球状の粒子も確認できたが、ほとんどどれが一次粒子なのか判断しがたい粒子が多く存在していた。また、試料番号P-1のようなはっきりとした板状粒子ではないが、立方体状で試料番号P-1の一次粒子とよく似た形状の粒子も観察される。したがって、蔥酸沈殿法によって得られる粉末は、試料番号P-1あるいはP-2の場合のように板状もしくは立方体状の形態を有すると言えそうである。
- ・二次粒子を観察すると、5 $\mu\text{m}$ 以下の角状あるいは角のとれた多角形状のものが多く、超音波照射後の影響はほとんど見られない。

⑦ M-1 (図7参照)

- ・一次粒子は、約0.2~0.5 $\mu\text{m}$ の球状である。

- ・二次粒子については、超音波照射なしのものは $20\text{ }\mu\text{m}$ 以上の大塊状であるが、超音波を照射すると $1\sim3\text{ }\mu\text{m}$ 程度の二次粒子に簡単に分散することがわから、照射時間を長くすると二次粒子どうしの再凝集も同時に起こっていることが観察される。
- ・この試料はMH法にて製造されたものであるが、先に記したADU法によって生成された粉末の特徴をも持っていることから両者の製法によって得られる粉末は似ていると考えられる。

## (8) M-2 (図8参照)

- ・一次粒子については、試料番号P-2と非常に似かよっており、 $1\text{ }\mu\text{m}$ 以下の球状粒子がほとんどであるが、数十 $\mu\text{m}$ の柱状粒子も含まれている。
- ・二次粒子は、試料番号M-1と全く類似している。(これは、同じ製法によると思われる。)
- ・二次粒子の中に柱状粒子が含まれるのは、MH法プロセスの最終段階の粉碎によるものだと考えられる。

## 3-2 密度測定結果

各試料の測定結果を表1に示す。

表1 粒子密度測定結果

試料番号	測定平均値 $\pm\sigma$ ( $n=3$ )	理論密度比	(参考) かさ密度
U-1	$9.57 \pm 0.03$	$87.3 \pm 0.3$	—
U-2	$9.93 \pm 0.04$	$90.6 \pm 0.4$	2.26
U-3	$11.07 \pm 0.09$	$101.0 \pm 0.8$	—
U-4	$9.99 \pm 0.10$	$91.1 \pm 1.0$	—
P-1	$10.41 \pm 0.35$	$90.8 \pm 3.1$	—
P-2	$10.40 \pm 0.04$	$90.8 \pm 0.3$	—
M-1	$11.49 \pm 0.05$	$103.9 \pm 0.5$	—
M-2	$10.56 \pm 0.3$	$94.2 \pm 0.3$	—

単位:  $\text{g/cm}^3$ ,  $n$ ; 測定回数

本試験で得られた値は、気体容積法（容積既知の容器の中へ試料粉体を入れたときに、試料の体積の分だけ排除される気体の体積を測定する方法）によるものであり、いわゆる“粒子密度（particle density）”である。一方、ブル工場では、充填特性として“かさ密度（bulk density）”を測定している。

また、 $\text{PuO}_2$ 、 $\text{UO}_2$ および $\text{MOX}$ （ $\text{Pu}$ 濃度20%，50%）の理論密度は、それぞれ $\rho(\text{PuO}_2)=11.46\text{g/cm}^3$ 、 $\rho(\text{UO}_2)=10.96\text{g/cm}^3$ および $\rho(\text{MOX}(20\%))=11.01\text{g/cm}^3$ 、 $\rho(\text{MOX}(50\%))=11.15\text{g/cm}^3$ である。（なお、 $O/M=1.98$ を用いた。）この理論密度と本測定結果の比を表1中の理論密度比として表してある。

一般に、体積測定法に基づく密度の規定には4つが知られている。

#### (1) かさ密度（bulk density）

図10-aのように粉体を既知体積の容器に充填して、充填した質量を測定し、単位体積当たりの質量を求めたもの。

#### (2) タップ密度（tap density）

既知質量の粉体を容器に注ぎ込み、タッピングを行う。その後、粉体の体積を測定して求めたもの。

#### (3) 粒子密度（particle density）

図10-bあるいは図10-cのような断面を有する粒子の表面をぬらしやすい液体又は気体に浸し、含んでいる気泡を十分とり除くと、液体又は気体は裂け目、割れ目、浅い凹みおよび洞穴には入り込むが、閉じた空洞には入らない。この状態で、粒子によって排除された液体又は気体の体積を求めたもの。

#### (4) 真密度（true density）

図10-a～dのような粒子を乳鉢等で十分細かく粉碎し、閉じた空洞がもはや存在しない状態にしてから(2)と同じ寸法で求めたもの。

また、上述の密度には（理論密度）=真密度≥粒子密度>タップ密度>かさ密度の関係がある。

表1の結果より、試料番号M-1に関しては上の関係が成り立っておらず、理論密度よりも測定値の方が大きくなっている。（試料番号U-3の場合については、理論密度が想定平均値の3σの中に入っているので除外する。）この理由として本測定で用いた密度測定装置は、ヘリウムガスを用いた気体容積法に基づいたものであるので、測定粉末の一次粒子あるいは二次粒子のガス吸着によるもの、また、 $\text{MOX}$ 粉の理論密度を算出する際に、 $O/M=1.98$ を用いているが、この $O/M$

比の違いによる誤差だと考えられる。

一般に、粒子密度を測定することにより、その試料中の不純物元素の有無、あるいは結晶構造が保たれているかどうかを推定できる物理的特性である。このことから、今回測定した試料の酸化ウラン系については、 $UO_2$ 相、 $U_3O_8$ 相（理論密度=11.29g/cm<sup>3</sup>）あるいはこの2相の混合、また、酸化プルトニウム系については、 $PuO_2$ 相を維持しており、各試料ともクローズ・ポアが存在していると推定される。

### 3-3 比表面積測定結果

図11～図18に各試料のBET多点法によって得られたプロット図を示す。また、表2にプロット図から求めた比表面積値を示す。

各試料のBETプロット図より、いずれの場合も直線が得られることより、原料粉末試料はBET式が適用できるということが確認された。

表2 比表面積測定結果

試料番号	測定平均値±σ (n=3)	(参考) プル工場値
U-1	3.85±0.08	3.3
U-2	1.59±0.05	2.52
U-3	2.84±0.55	2.8
U-4	3.14±0.06	3.88
P-1	3.35±0.04	8.00
P-2	7.86±0.06	10.47
M-1	3.45±0.03	—
M-2	4.59±0.07	4.27

単位；m<sup>2</sup>/g, n；測定回数

本測定およびプル工場にて得られたいずれの値もBET(Brunauer-Emmett-Teller)式を採用して、固体表面に物理吸着するガス分子の量から表面積を求めたものである。しかし、測定方法は、プル開室は多点法であり、一方、プル工場は1点法である。また、多点法と1点法測定値を比較すると原理的には多点法測定値の方が必ず大きくなる。しかし、表2の結果からは、必ずしもその関係が成り立ってはなく、酸化プルトニウム系の試料についてはその値が大きくずれており、プル工場測定値の方が大きな値となっている。これについては、プル工場測定値は、試料

番号 P - 1 は測定時期が1987年頃、試料番号 P - 2 は1983年頃と古く、年月がかなり過ぎている。しかし、酸化ウラン系についてのプル工場測定値も以前に得られたものである。したがって、この差については酸化プルトニウム独自の性質のものと考えられ、特に酸化プルトニウムには自己照射挙動するので、その際の結晶構造の歪みあるいは崩壊により、粒子表面の変化も考えられる。しかし詳細についてはよくわからない。しかし、時間経過に伴う比表面積測定と粒子表面の SEM写真観察（高倍率）、また、X線回折測定における結晶度・結晶子サイズの検討を行えば解明できるかもしれない。

表 2 の結果より、比表面積は試料番号 U - 2 が小さく、試料番号 P - 2 が大きな値であることがわかる。また、 $\text{UO}_2$ 粉よりも $\text{PuO}_2$ 粉の方が、あるいは MOX 粉の方がより大きな値となっている。各試験試料の SEM写真像と以上の結果を比較してみると、粒子（二次粒子）表面に凹凸が多く存在（又はporous）すると比表面積が大きくなるという関係が必ずしも成立していない。例えば、試料番号 P - 2 と U - 2 とでは、SEM写真像だけを観察すると、試料番号 U - 2 の方が粒子表面に凹凸が多いが、比表面積は小さくなっていることがわかる。これについては、試料番号 P - 2 は今回の SEM写真像では観察されない  $0.03 \mu\text{m}$  以下のクラック又はポアが数多く存在しているためと推定できる。このことについては、水銀ポロシメータを用いた細孔分布測定試験を行えば確認できると思われる。

比表面積より比表面積径が  $d = K / \rho \cdot S$  ( $d$  ; 比表面積径,  $K$  ; 形状係数,  $\rho$  ; 粒子密度,  $S$  ; 比表面積) によって求まる。これによって求めた各試料の比表面積径を表 3 に示す。

表3 各試料の比表面積径とSEM写真からの一次粒子径

試料番号	比表面積径*	一次粒子径
U-1	0.16 μm	約0.5~1.0 μm
U-2	0.38 μm	約0.1~1.0 μm
U-3	0.19 μm	約0.3~0.6 μm
U-4	0.19 μm	約0.1~0.5 μm
P-1	0.17 μm	約5.0 μm
P-2	0.07 μm	0.5 μm以下
M-1	0.15 μm	約0.1~0.5 μm
M-2	0.12 μm	1.0 μm以上

\* 1 形状係数は粒子を球または立方体に近いと仮定し、6とし、粒子密度は本測定で得られた測定結果を用いた。

表3より、試料番号P-1およびP-2が比表面積とSEM写真から観察した一次粒子の粒径の間に大きな差が生じていることがわかる。試料番号P-1については、一次粒子は多角形に近い形状をしているにもかかわらず、比表面積径が粒子を球状とみなして算出したものであるから、両者に差が生じたと考えられる。また、試料番号P-2に関しては、一次粒子径は他の試料と同じ位の大きさであるが、粒子表面に多くのポアあるいはクラックが存在しているため比表面積がかなり大きくなつたためと考えられる。

### 3-4 粒度分布測定結果

各試料の測定結果を図19~図26に示す。

また、図27~図34に各試料における照射時間による粒度分布（積算分布）の推移を表したもの、図35~図42に照射時間による平均径（50%径）の変化をまとめて示す。

粒度分布の基準分布には、4つの基準分布がある。個数基準分布は、ある粒度区分に含まれる粒子が全粒子数Σnに対する個数、長さ基準分布は、全粒子の長さの総和Σnd中どれだけの長さか、面積基準分布は、全粒子表面積の総和Σnd<sup>2</sup>中どれだけの面積か、および体積基準は、全粒子体積の総和Σnd<sup>3</sup>中どれだけの体積かを表したものである。また、各分布図より4種類のどの基準分布にするかによって、同一の粉体でも粒度分布は異なってくる。一般に粉体工学において採用され

ているのは、体積基準分布である。これは、従来用いられてきた沈降法や遠心法等は体積基準を用いているため、これらの装置で得られたデータと比較・検討するためである。しかし、個数基準と体積基準を比較することより、その粒度の分布が均一であるか、それとも幅の広い分布をしているかがわかることより、本試験では個数基準分布と体積基準分布から総合的に評価することにした。

なお、粉末の粒径 (particle diameter) とは本来、粒子直径の意味であって、厳密には球形以外の粒子には定義できず、粒度 (particle size) として表す。また、”粒子の大きさ”を表示する次元には長さ [L] だけではなく、面積 [ $L^2$ ] や質量 [M] 等がある。しかし、通常または本試験では、直感的にわかりやすく、評価しやすいようにするために、[L (長さ)] なる次元の粒径に換算して表示する。

今回の試験において、粒度分布測定の際に超音波を照射して行っている。これは、第一に粉末をできるだけ一次粒子まで分散させること。第二に超音波照射により粉の崩れ方がわかり、粉の性質 (軟らかい、あるいは、硬い粉か? また、破壊モードが小さいか、あるいは、大きいか?) を知るためである。図43に破壊モードの説明を示す。

以上の結果より以下の事が確認された。

① U-1 (図19, 図27および図35参照)

- ・図27から個数基準および体積基準とも超音波照射なしの測定開始粒子径が超音波を照射することより 1 衍も小さくなっていることがわかり、50%平均径も小さくなっていることが認められる。このことより、この粉末は簡単に凝聚体から二次粒子あるいは一次粒子に分散しやすいと推定される。
- ・個数および体積基準における粒度分布幅が照射時間を長くすることより、明確に狭くなってしまい、両基準の分布が同じ型、また、50%平均径が同じことより単分散粒子型に近い型になっていることが推定される。このことは、図35において明確である。また、同図より個数基準と体積基準の平均径の変化が同じになるのは600Sと短く、破壊モードが小さいことが考えられる。したがって、軟らかい粉体だと推定される。
- ・また、図27の個数基準の分布が超音波照射時間長くすると、再凝聚していることが認められる。本試験においては、粒度分布を測定する際の分散液に蒸留水を使用している。したがって、この試料粉末は蒸留水に対して表面電位 (ジ

ータ電位) が低いため、不安定の状態であると考えられる。

- ・図19における体積基準の差分分布の超音波照射時間の推移を観察すると、照射時間を長くすると平均値の極大値が複数個存在するようになることから、分散のしかたは表面から崩れる表面破壊によるものだと思われる。これについては、図1におけるSEM写真像からも判断される。

#### ② U-2 (図20, 図28および図36参照)

- ・図28より両基準の測定開始粒子径が同じであることより、超音波照射なしの時点で一次粒子あるいは二次粒子のまま分散しているものが、より多く存在していることがわかる。これについては、図2におけるSEM写真像からも裏付けされる。
- ・同図より超音波を照射することにより、試料番号U-1の場合と比べて若干分布幅は広いが、単分散粒子型に近くなっていることが推定される。これは、両基準の分布型は似かよった型をしているが、50%平均径が $0.2\mu m$  (個数基準) と $0.4\mu m$  (体積基準) というように多少違いが生じているからである。
- ・また、個数基準に関して照射時間を長くするにつれ、単分散粒子型に近くなっていくが、再凝集も同時に起こっていることも認められる。このことについては、上記で示した試料番号U-1の場合と同様な原因によるものだと推定される。
- ・図20より、試料番号U-1ほど顕著ではないが、表面破壊によって分散が起こっていると思われる。
- ・図36より、破壊モードは試料番号U-1と比べてかなり大きいと考えられる。したがって、試料番号U-1に比べて硬い粉だと推定される。

#### ③ U-3 (図21, 図29および図37参照)

- ・図21、図29および図37を観察すると、先に記した試料番号U-1の場合と同様な傾向を示していることがわかる。これは両試料がADU法により製造されたものであるからである。したがって、同製法によって得られる粉末は種類が異なっても粒径および粒度分布は同じであることが確かめられた。

#### ④ U-4 (図22, 図30および図38参照)

- ・図22および図30より、同じADU法で製造された試料番号U-1およびU-3とは異なり、AUC法により得られた試料番号U-2と同じ傾向が見られる。これは、試料番号U-1およびU-3については未粉碎であるが、この試料に関しては活性を高めるため粉碎処理を行っているため、他の試料とは異なった傾向を示していると思われる。粉碎処理により、表面が活性となり、分散しやすくなり、測定開始粒子径も小さくなるためである。
- ・しかし、図38より破壊モードは試料番号U-1およびU-3と同じようである。
- ・これらのことより、粉碎処理は表面活性を大きくさせ、凝集体における表面の二次粒子あるいは一次粒子をはがしやすくなるが、凝集体における破壊モードまでは変化させないと考えられる。

#### ⑤ P-1 (図23、図31および図39参照)

- ・図23および図31より、この試料の分散は典型的な表面破壊によるものだと推定される。これは、図5のSEM写真像の照射時間が長い像から明らかであると思われる。
- ・図31における個数基準の分布図より超音波を照射させても粒度分布が変化がないことが観察されることは、この試料の凝集体が安定であること、また、SEM写真像より一次粒子あるいは二次粒子が他の試料よりも硬そうであることからであろう。
- ・また、同図における個数基準と体積基準の分布より単分散粒子型ではなく、粒径に幅をもった分布をしていると推定される。
- ・図39においても、個数基準と体積基準の平均径の変化が同じになるのは5200Sと測定試料の中で一番長いことから、破壊モードが一番大きいと推定される。

#### ⑥ P-2 (図24、図32および図40参照)

- ・図32より、個数基準および体積基準分布が照射時間を長くしても変化が現れないことより、この試料は超音波によってほとんど分散および再凝集は影響を受けないと推定される。
- ・各図は同じ蔴酸沈殿法から得られた試料番号P-1と異なる傾向を示しており、ADU法の場合とは違っている。

- 分布については、試料番号P-1と比べて若干幅の狭い型をしていると推定される。

## (7) M-1 (図25, 図33および図41参照)

- 各図とも試料番号U-2の場合と同じ傾向を示している。しかし、この場合よりも、超音波を照射することより、より単分散粒子型に近い分布をとることが認められる。

## (8) M-2 (図26, 図34および図42参照)

- 試料番号M-1と同様である。しかし、試料番号M-1と比べて、超音波による表面破壊が起こりやすいことが図26より考えられる。

表4に各試料の比表面積から算出した比表面積径とレーザー回折法による粒度分布から求めた各基準の50%平均径および体面積平均径をまとめて示す。なお、50%平均径は比表面積径の試料前処理条件と同一にするため、超音波照射時間を0Sのものを用いた。また、比表面積径は体面積平均径 ( $\Sigma nd^3 / \Sigma nd^2$ ) であるので、表4に本試験から求めた粒度分布測定データから算出した体面積平均径を示してある。

一般に、これらの粒子径を比較することにより、粒子の凝集状態がわかり、粒子を構成している一次粒子の数が多いほど、両者の値はかけ離れていると言われている。

表4 比表面積径とレーザー回折法による粒径の比較

試料番号	比表面積径	個数基準	体積基準	体面積平均径
U-1	0.16	0.5	10.5	8.92
U-2	0.38	0.15	0.45	0.48
U-3	0.19	2.0	10.0	10.34
U-4	0.19	0.1	3.0	0.48
P-1	0.17	0.1	2.5	0.51
P-2	0.07	0.15	0.3	0.34
M-1	0.15	0.13	1.3	0.56
M-2	0.12	0.1	0.7	0.51

単位:  $\mu\text{m}$

この表より試料番号U-1およびU-3において比表面積径と体面積平均径との間に大きな差があり、試料番号U-2ではそれらが非常に近い値となっている。また、MOX粉に関しては、試料間におけるそれぞれの値に差がほとんどないことがわかる。

また、各試料のSEM写真像（超音波照射時間0Sの写真）と対比させると、上述のように比表面積径と体面積平均径がかけ離れている試料番号U-1およびU-3については、両者とも二次粒子凝集体の形状がダンゴ状であり、それらの粒径はほぼ均一である。高倍率の一次粒子については、形状はそれぞれ異なるが、他の試験試料のと比べると一次粒子の大きさは二次粒子の場合と同様均一であることが観察される。しかし、試験試料U-2あるいはU-4においては、二次粒子凝集体はダンゴ状であり、その粒径は試料番号U-1とほぼ同じであるが、粒径が小さいものから大きいものと粒径の分布に広がりがある。したがって、試料番号U-1およびU-3については、平均的に二次粒子凝集体中の一次粒子の数が多いと推察され、上記の一般論を裏づけている。

また、試験試料U-3と同じ比表面積径をもつU-4については、その体面積平均径が異なっている。それは、試験試料U-4はU-3と同様に二次粒子凝集体の形状はダンゴ状であるが、その粒径分布の幅が広い。したがって、粒度分布における粒径に差が生じ、このような結果になったと思われる。

粒度分布測定結果の表から、個数基準と体積基準の50%平均径に大きな差があることより、U-4、M-1およびP-1の粒径分布が広いだろうと推定される。また、SEM写真像観察から、試料番号P-1が単分散粒子（パチンコ玉のように大きさに分布がない粒子）だと判断されるが、粒度分布測定結果の表からはそうだとは言えない。それは、試料番号P-1の粒子形状（一次粒子だろうと推定される粒子）が板状であるため粒子を理論球体として算出させる回折法からの粒径と差が生じたためと推定される。したがって、粒径あるいは粒度分布について検討するにあたっては、粒度分布測定のみだけではなくSEM写真像観察をも考慮する必要があると思われる。

#### 4. まとめ

本試験の測定結果から以下のことがわかった。

- (1) いずれの試料も粒子密度の値が理論密度に似かよっているため、これらの試料の構成元素中の不純物はかなり少ないと思われる。

- (2) 酸化ウラン系において、同じ製法（例えば、ADU法）で得られた試料に関しては、SEM写真像を観察すると粉末の形状について同様な観察結果が得られたが、粉碎工程を行った試料と未粉碎の試料の粒度分布測定については、異なった結果が得られた。これは、粉碎を行うことより、粉体表面が活性となり、もろくなりやすいため粒度分布の幅が広くなったと推定される。
- (3) しかし、酸化プルトニウム系においては、同じ製法（例えば、蔴酸沈殿法）で製造された試料でもSEM写真像観察あるいは比表面積測定においても異なった結果が得られた。これについては、各試料の詳細なプロセスが不明（入手不可能）なため、明確な判断はできないが、試料調整段階の沈殿濃度あるいは沈殿時間等が異なる。また製造過程での粉碎処理の有無のため粉末の各物性値が異なったと考えられる。
- (4) 各試料の粒度分布測定において、超音波を照射することにより得られる粒径あるいは粒度分布に差が生じることがわかった。燃料製造工程における原料粉を配合する段階でボールミルによる粉碎は不可欠である。また、超音波を照射するだけでも粉末の物性値に変化が生じることから、ボールミルによる粉碎の処理前と処理後の粉末の各物性測定値は大きく変化する可能性もある。したがって、今後の試験を行うにあたっては、物性値の変化に及ぼす粉碎の影響についても正確な測定が必要である。
- (5) 製法の違いにより、得られる粉末の各物性値が異なることが本試験によってわかったが、今後の試験を実施するにあたっては、その原料粉の履歴（例えば、どのような製法で製造されたものなのか、仮焼温度は何度なのか、あるいは粉碎処理を行ったものなのか）を把握しなければならない。
- (6) 今回の試験は、原料粉の物性値を把握するため実施したものであるが、今後はその物性値が焼結挙動（収縮特性、あるいは焼結密度）におよぼす影響について把握しなければならない。
- (7) 今後の課題としては、粒度分布測定において粒子をできるだけ一次粒子まで細かく分散させるための分散剤および分散媒の検討ならびに開発を行い、一次粒子あるいは二次粒子それぞれの特性と焼結挙動との関係を掘むこと。また、粒子密度あるいは比表面積径および体面積平均径が試料により異なることから、粒子の形状が何らかの関わりがあると考えられ、粒子形状の評価を定性的ではなく、形状の定量化を図る手段（例えば、画像解析による粒子形状評価の解析コードの開発等）を開発

する必要があると考えられる。

### 5. 謝 辞

本試験を実施するにあたり、試料の提供並びに評価・解析にあたって有意義な御助力を頂いた飛田主査、加藤（直）研究員、また、多数のS E M写真像を撮って頂いた(株)検査開発の藤井氏に心より感謝いたします。

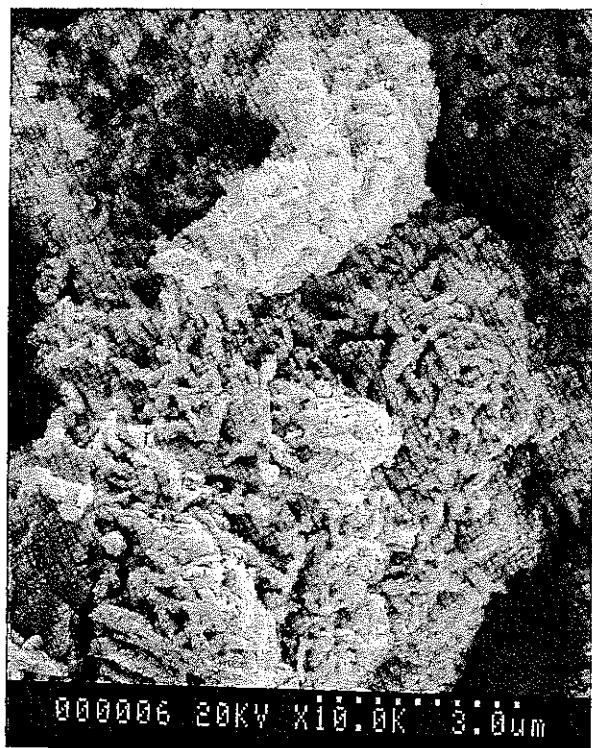
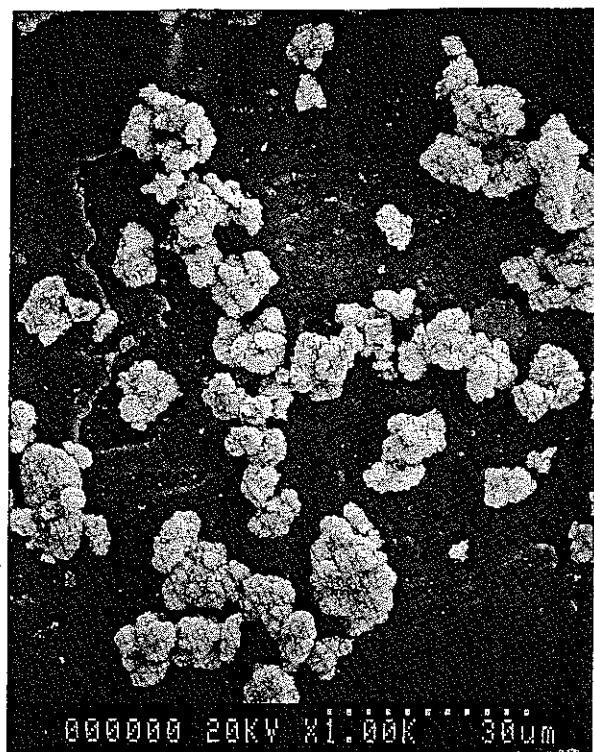


図1-a U-1のSEM写真像  
(超音波照射時間:0S)

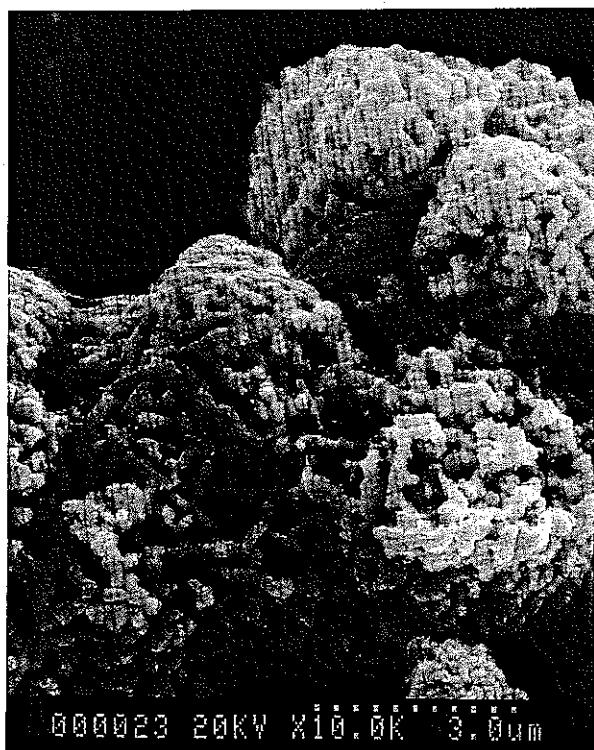
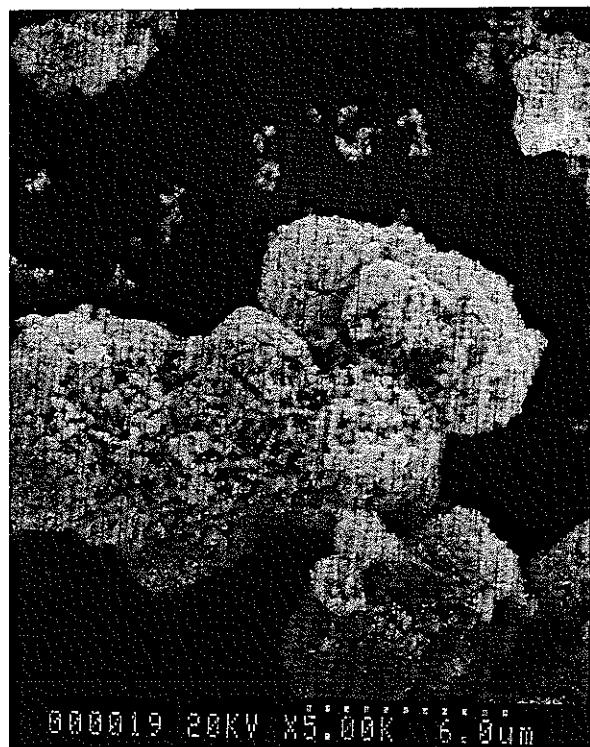
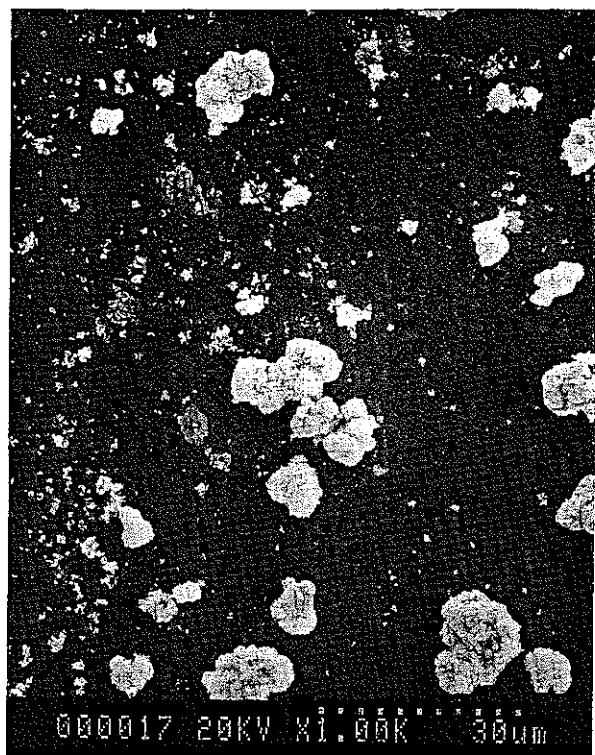


図1-b U-1のSEM写真像  
(超音波照射時間:180S)

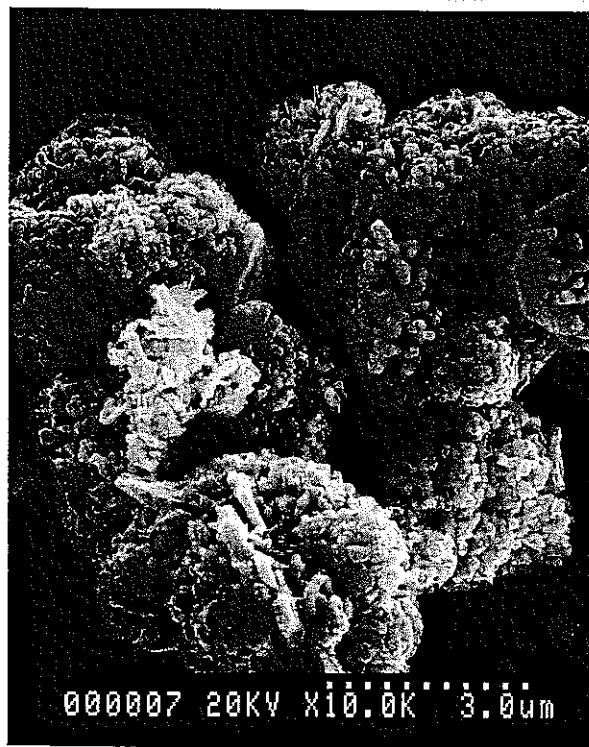
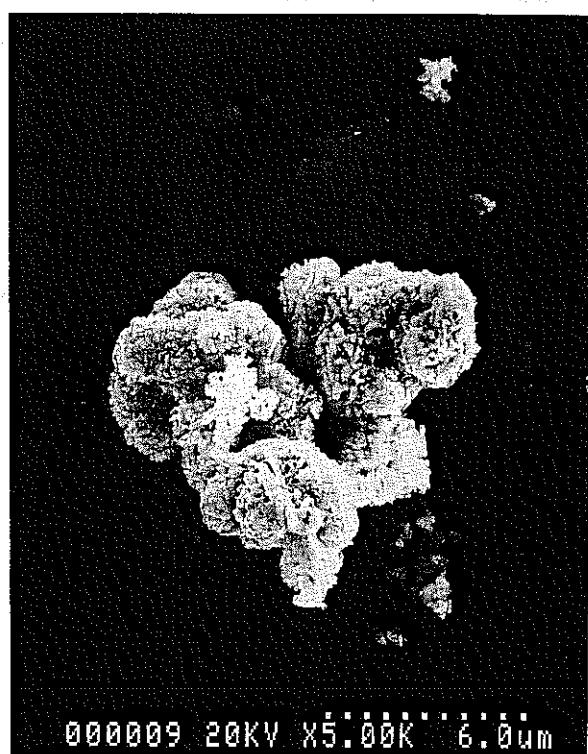
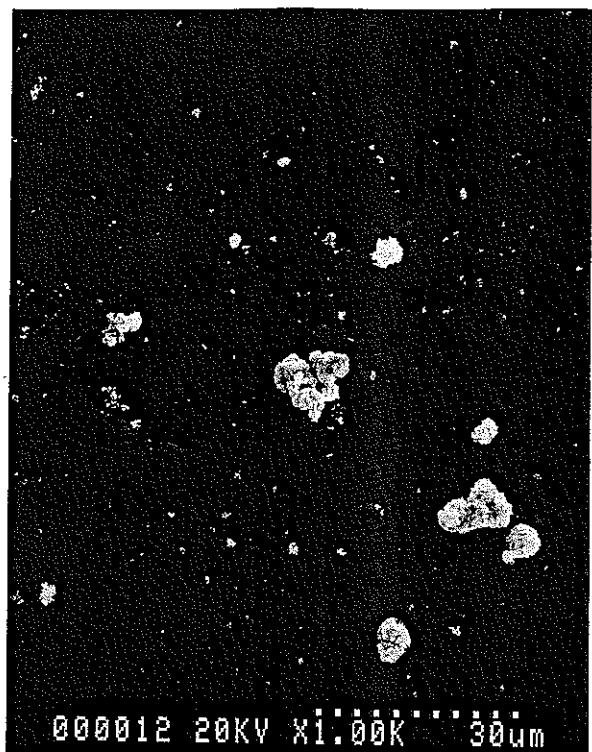


図1-c U-1のSEM写真像  
(超音波照射時間: 5M)

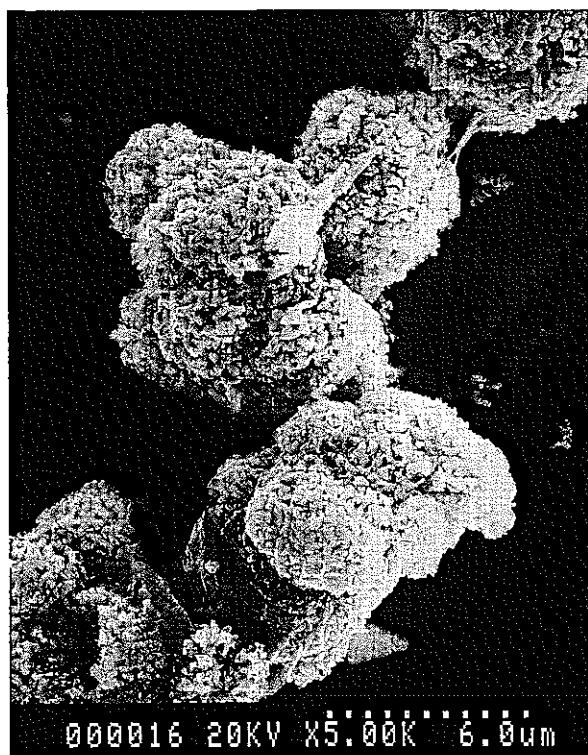


図1-d U-1のSEM写真像  
(超音波照射時間: 10M)

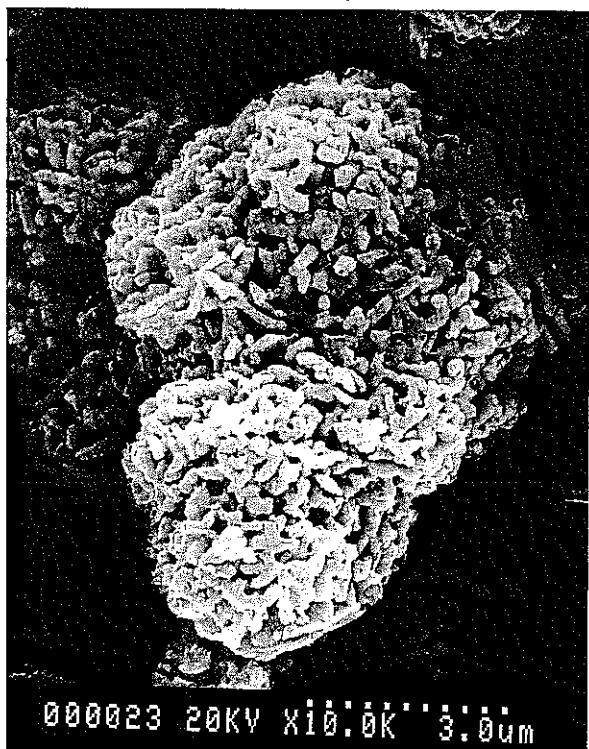
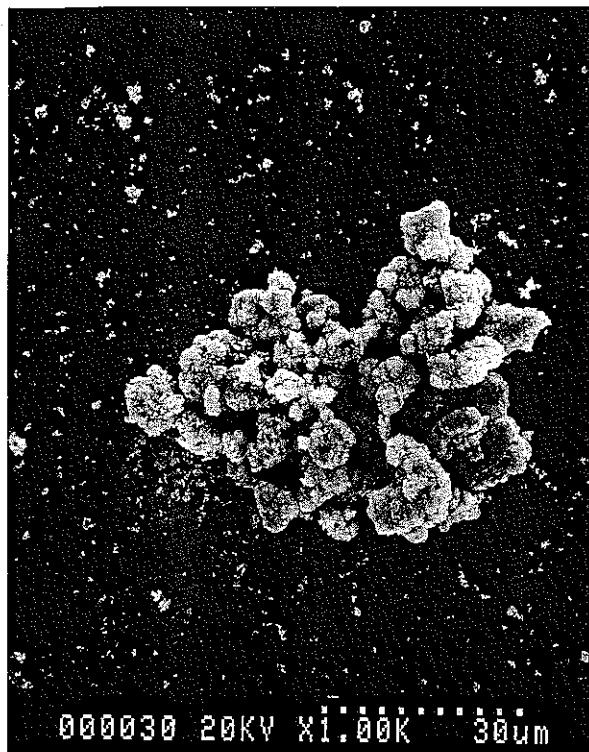


図1-e U-1のSEM写真像  
(超音波照射時間: 20M)

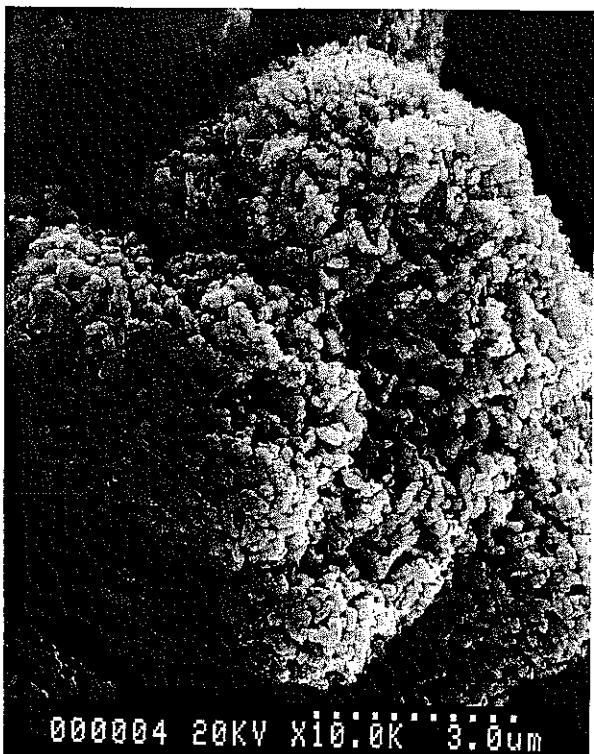
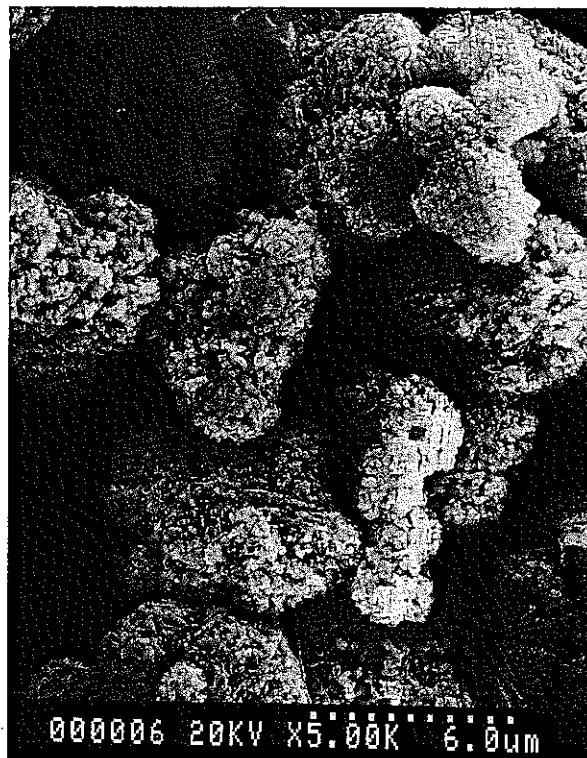


図1-f U-1のSEM写真像  
(超音波照射時間:40M)

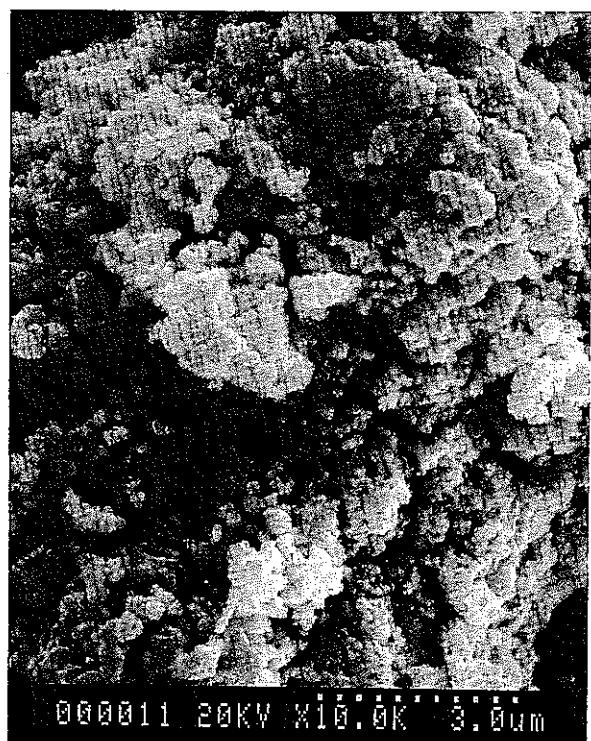
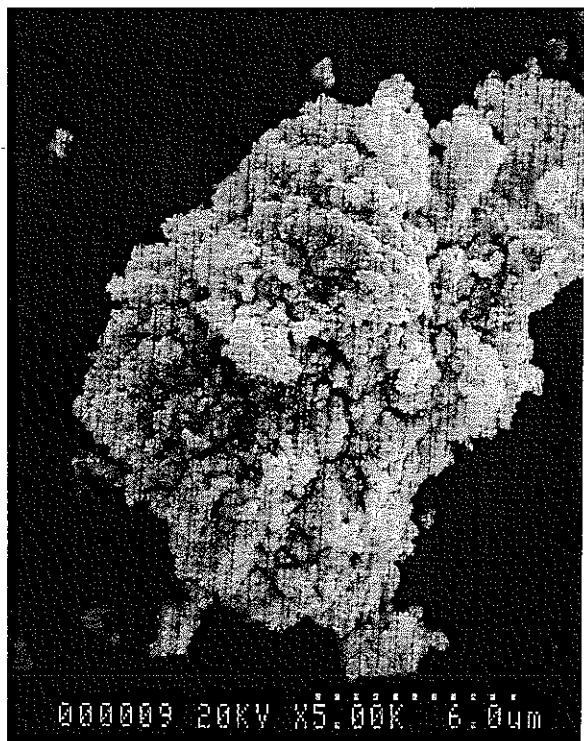
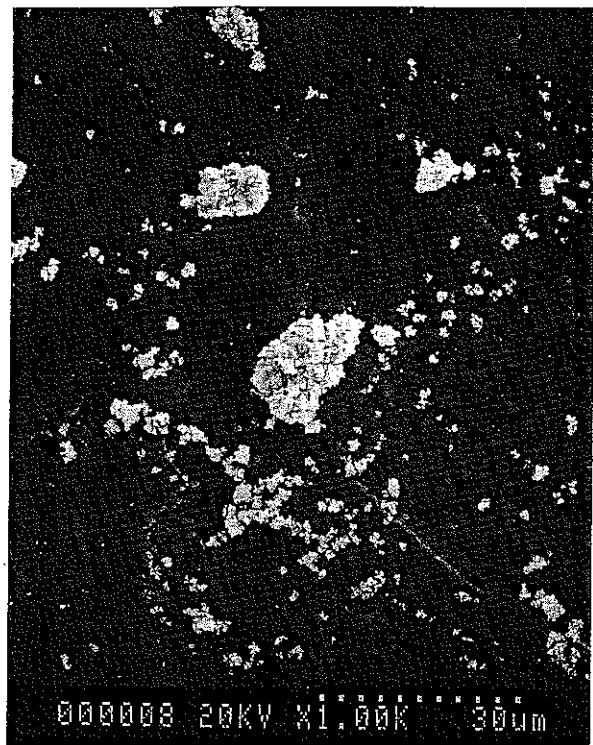


図2-a U-2のSEM写真像  
(超音波照射時間:0S)

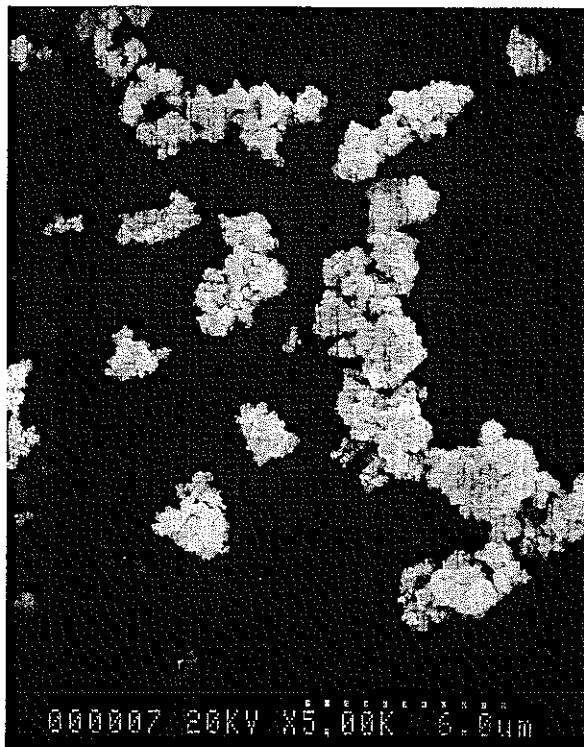
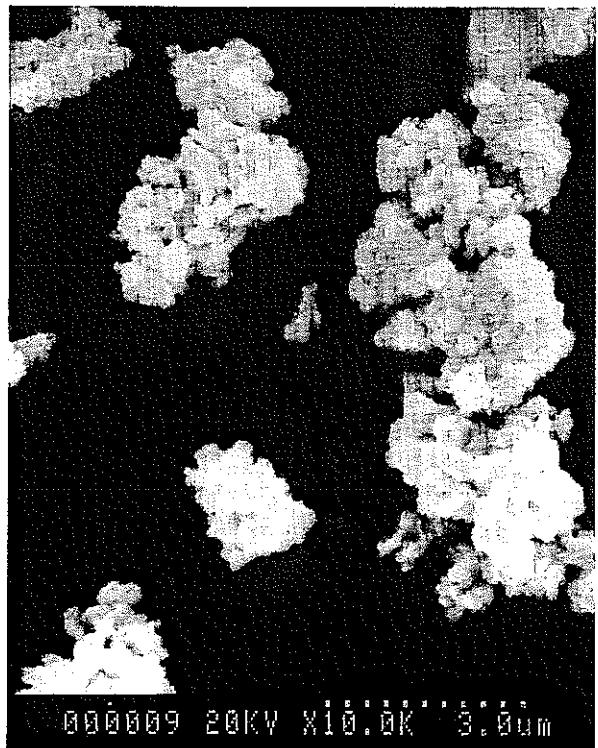
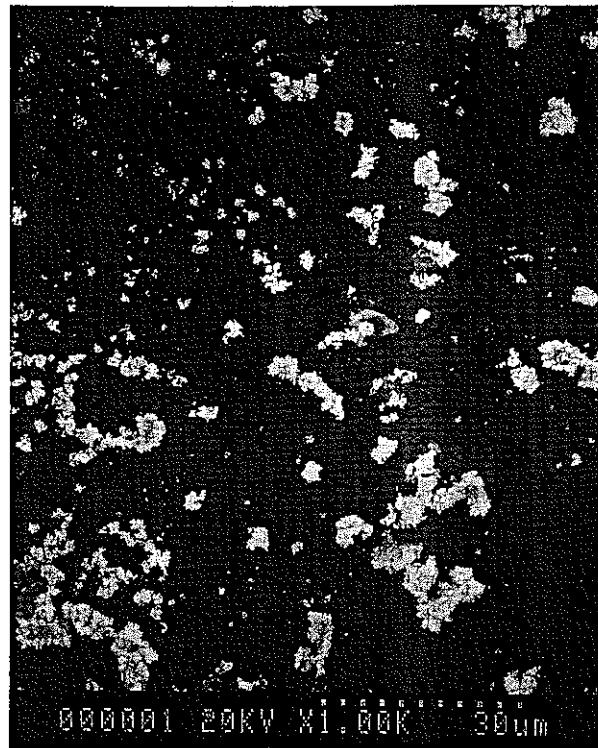


図2-b U-2のSEM写真像  
(超音波照射時間:180S)

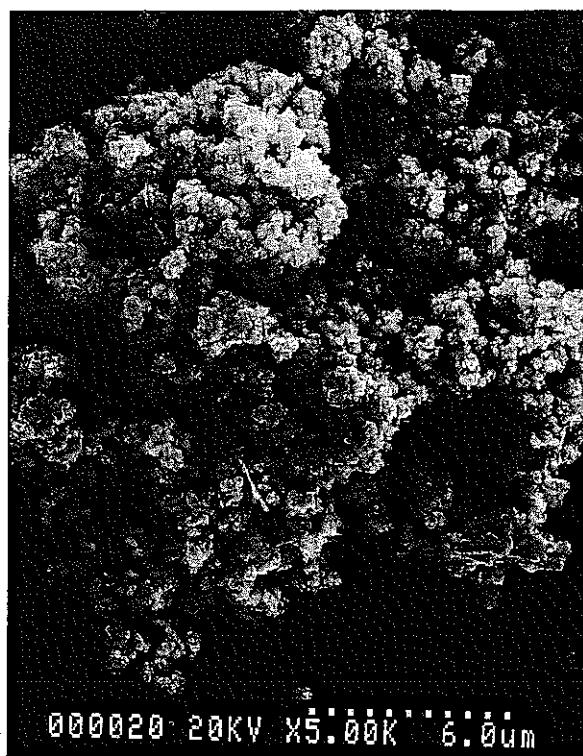
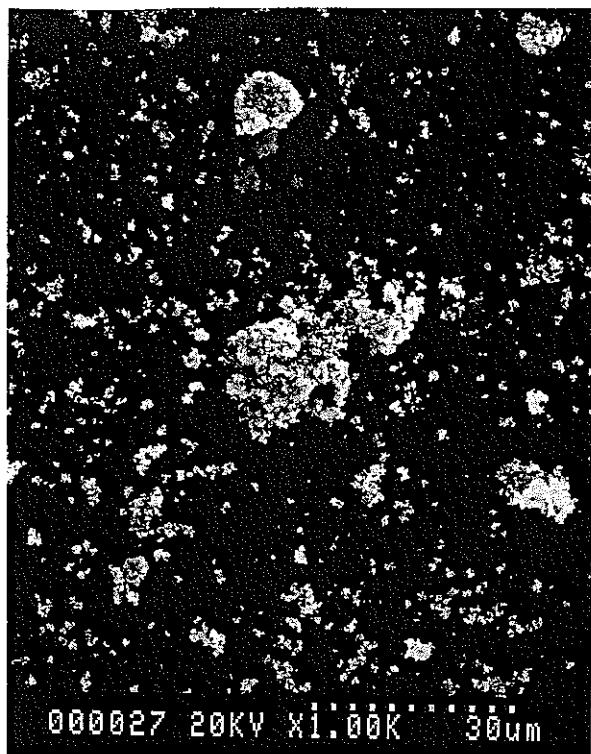


図2-c U-2のSEM写真像  
(超音波照射時間:10M)

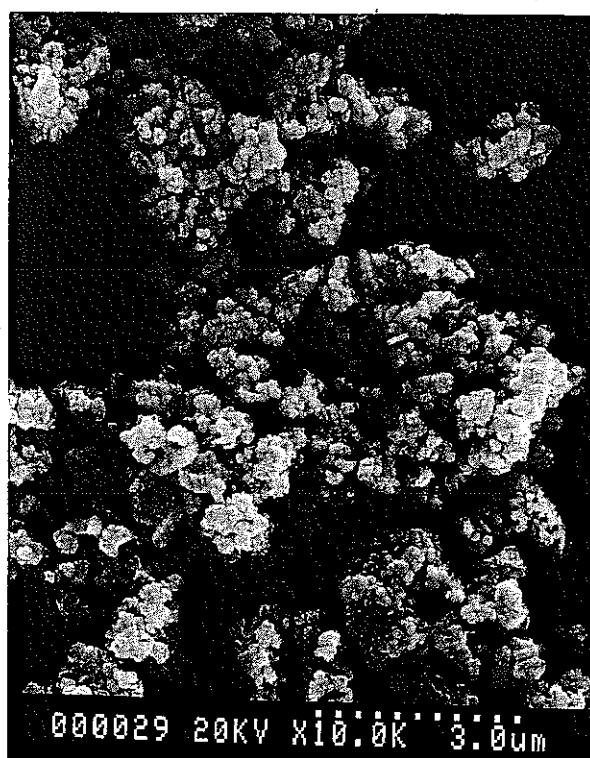
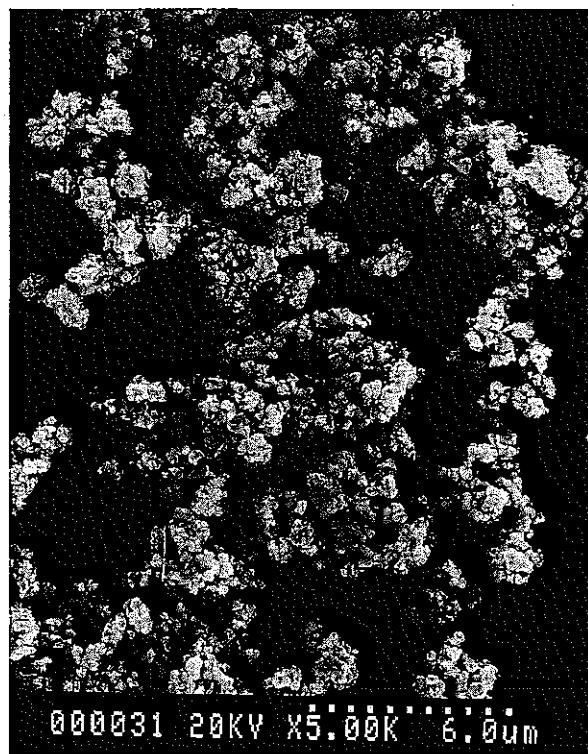
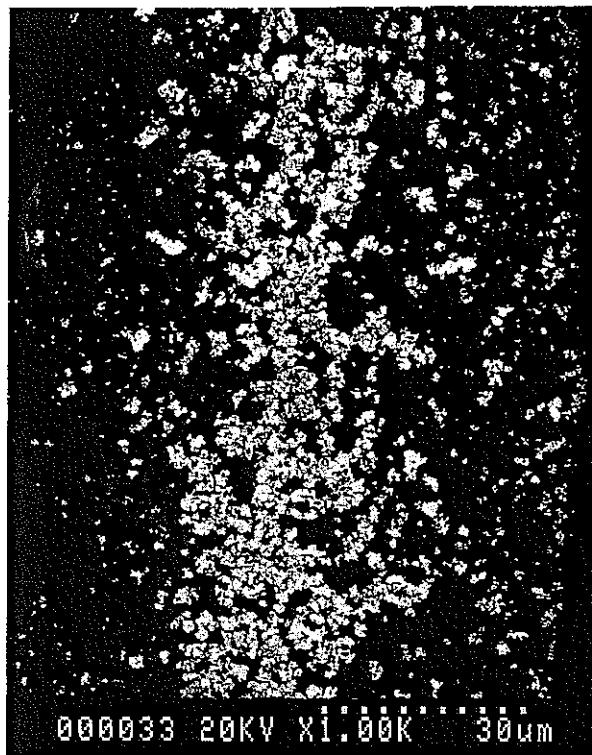


図2-d U-2のSEM写真像  
(超音波照射時間:40M)

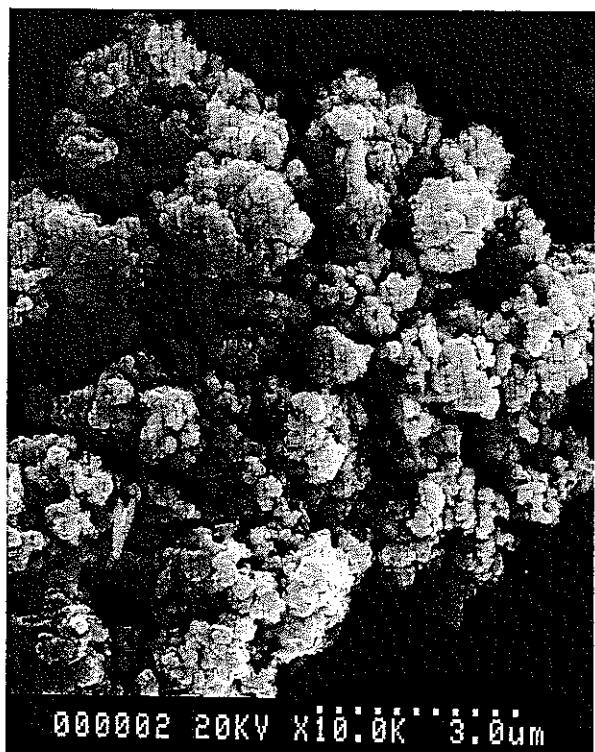
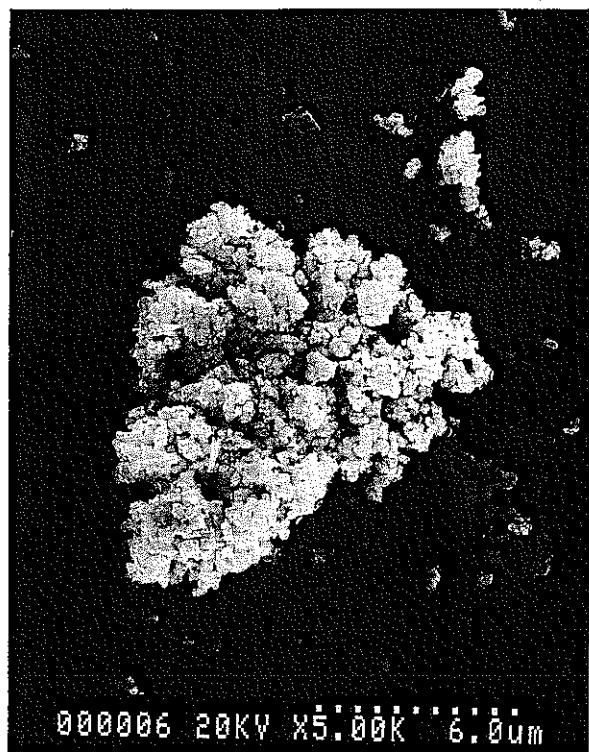
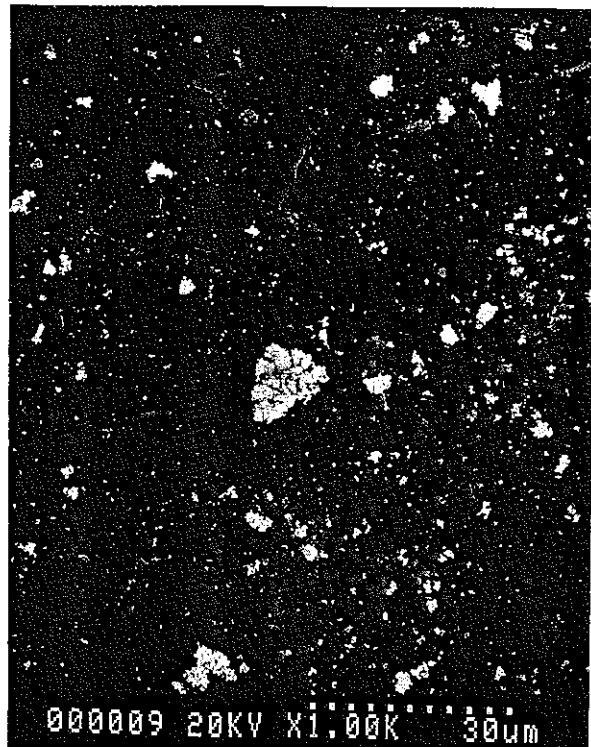


図2-e U-2のSEM写真像  
(超音波照射時間:60M)

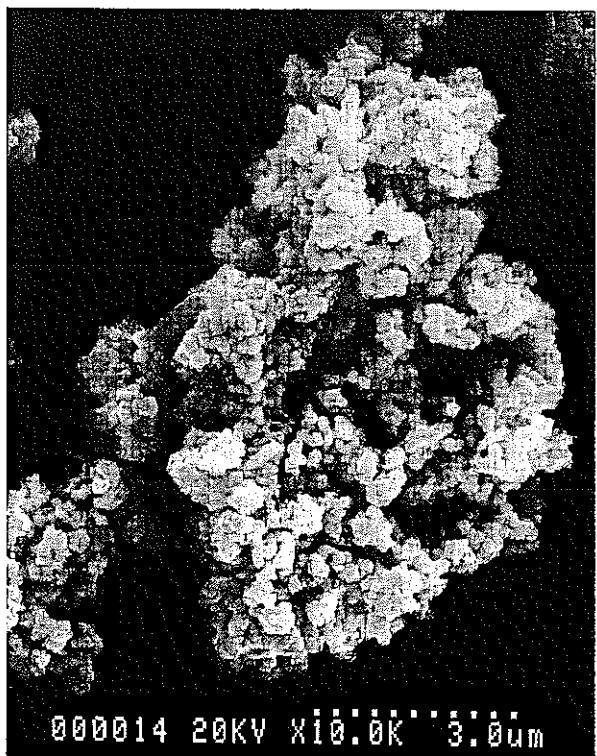
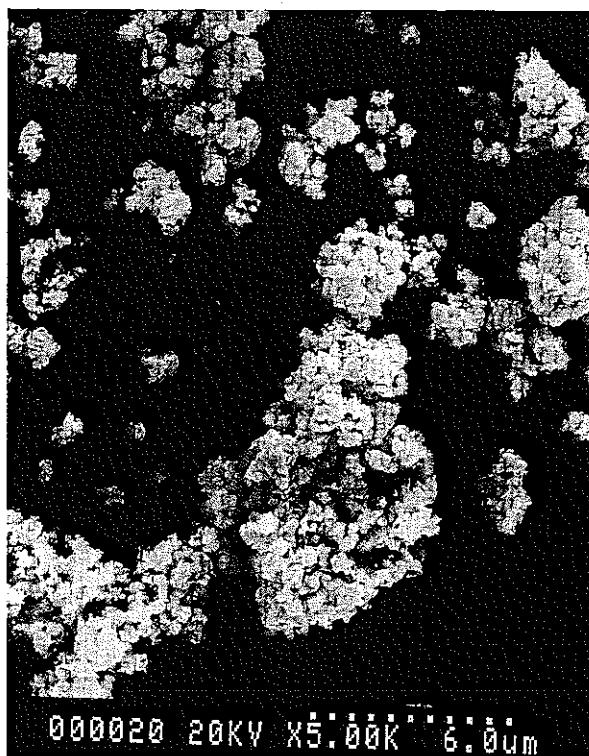
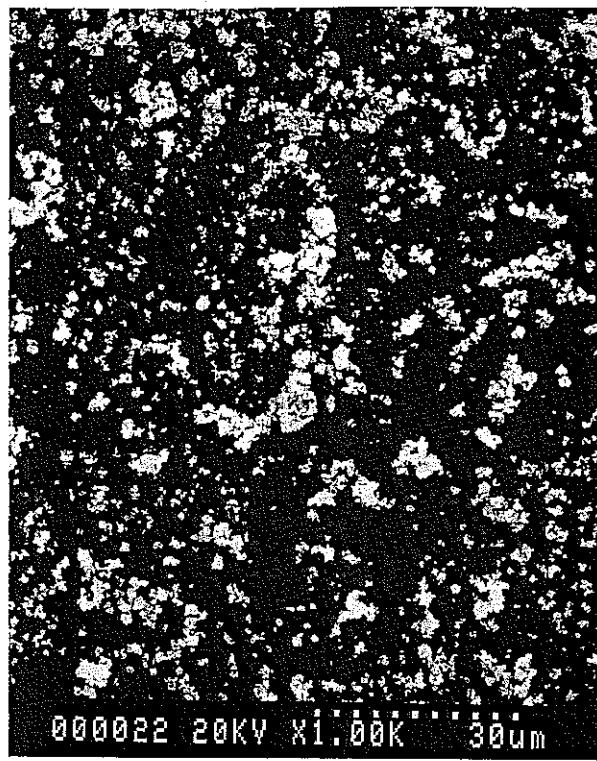


図2-f U-2のSEM写真像  
(超音波照射時間:90M)

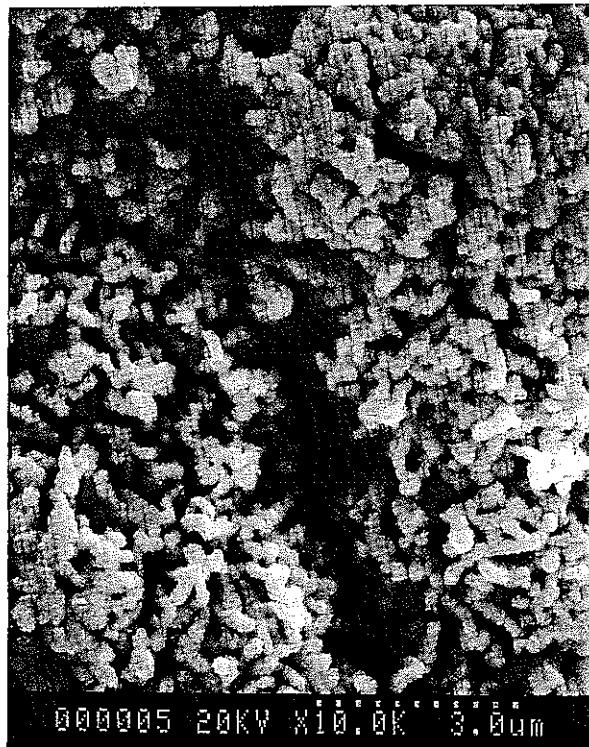
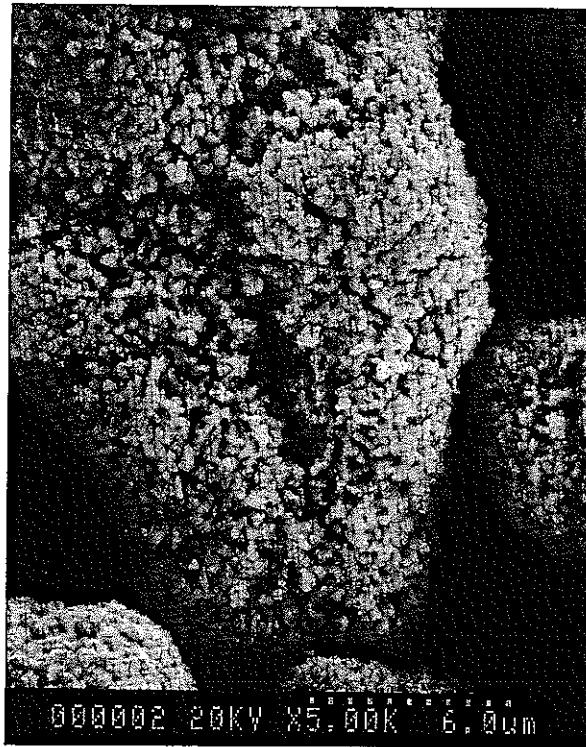
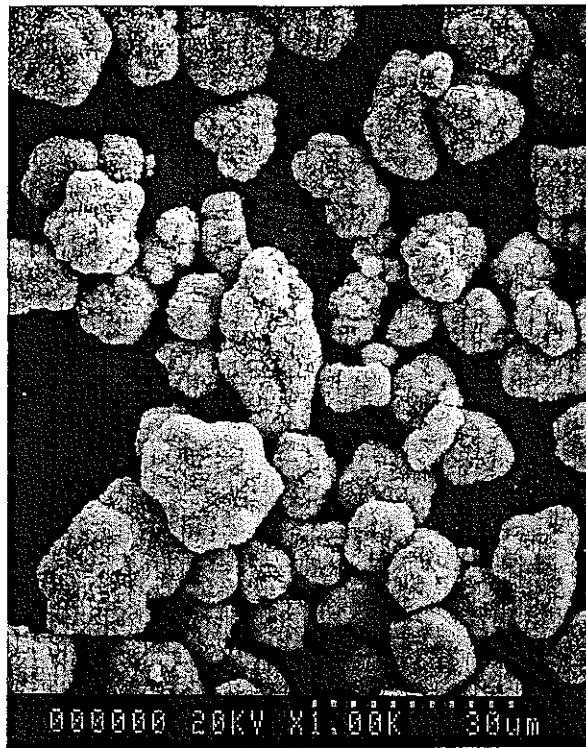


図3-a U-3のSEM写真像  
(超音波照射時間:0S)

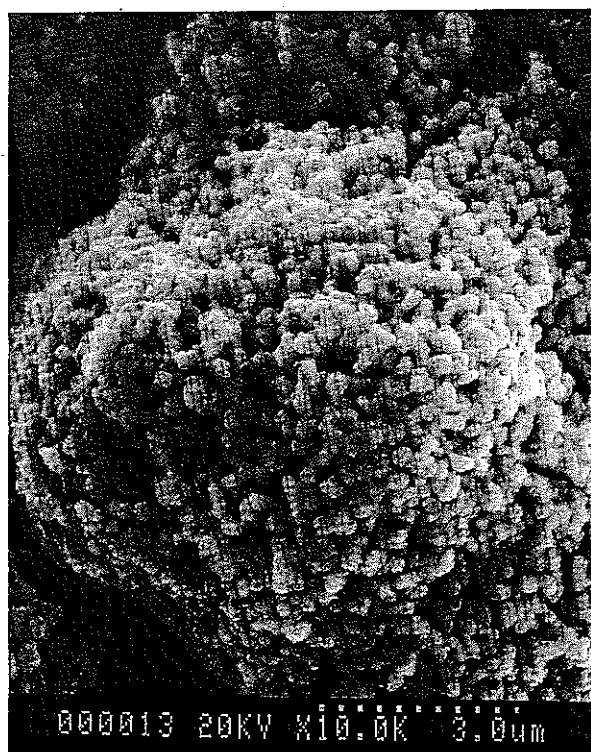
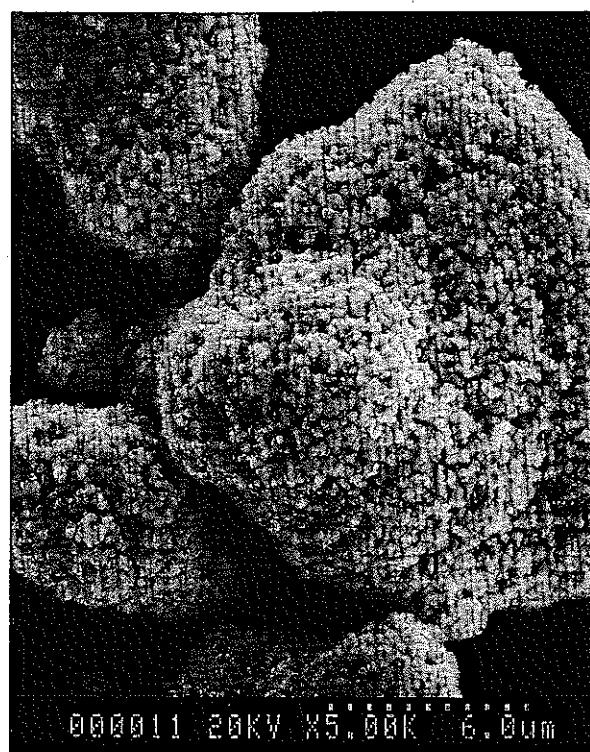
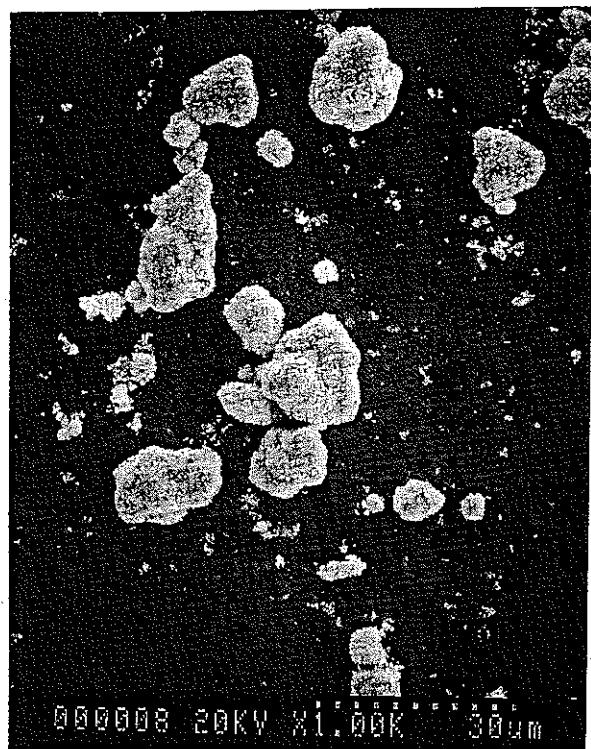


図3-b U-3のSEM写真像  
(超音波照射時間:180S)

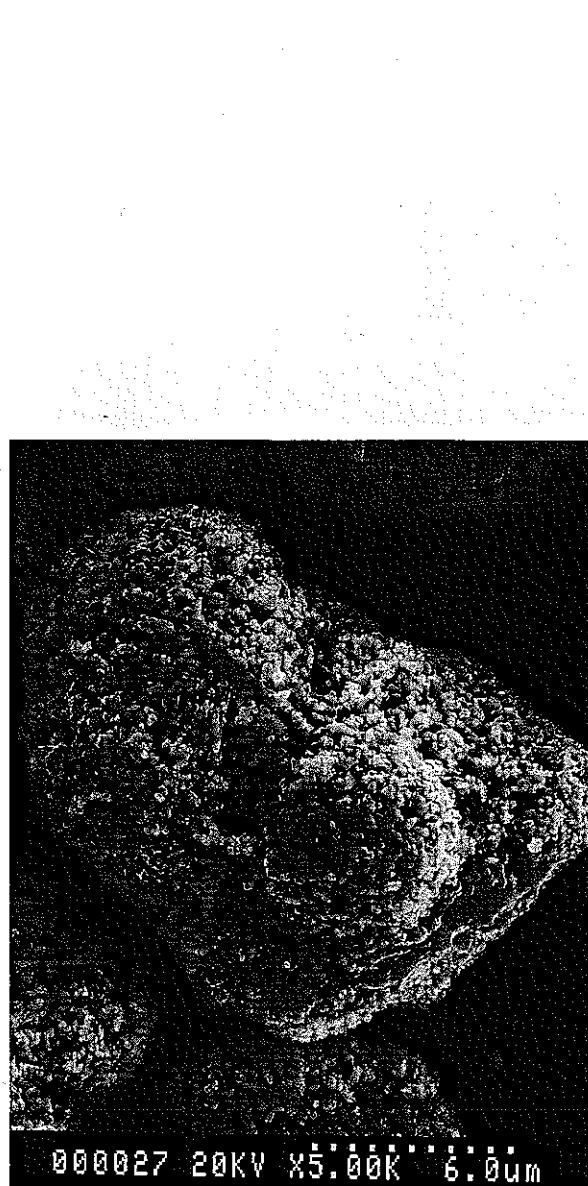
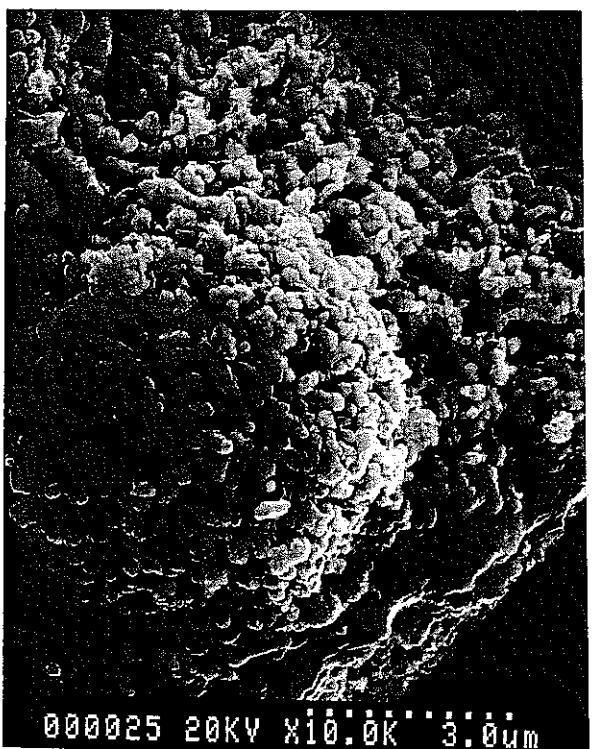
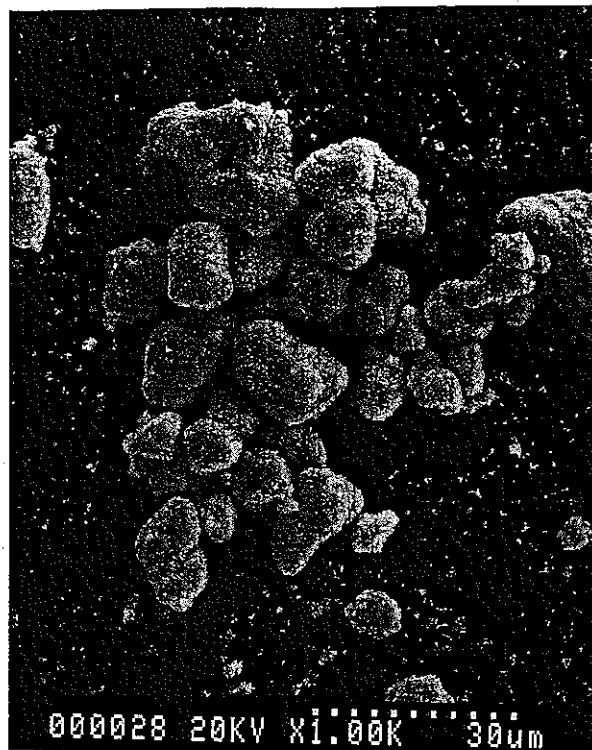


図3-c U-3のSEM写真像  
(超音波照射時間: 5M)

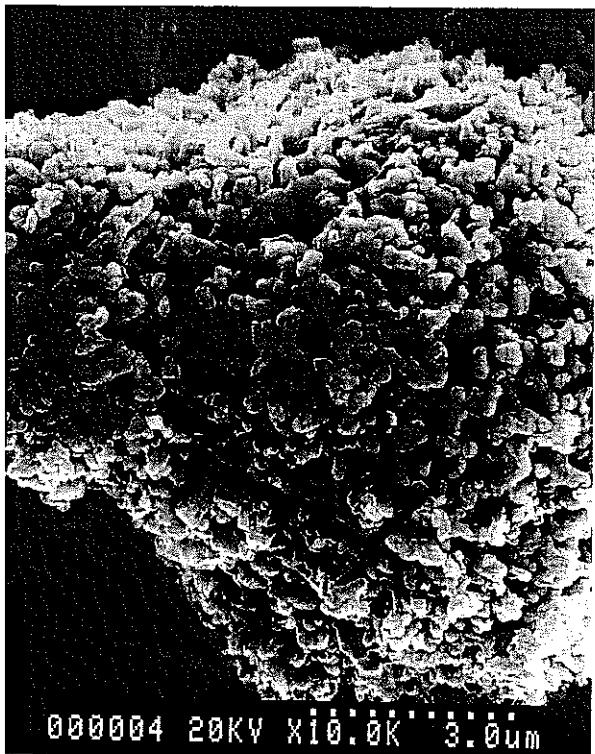
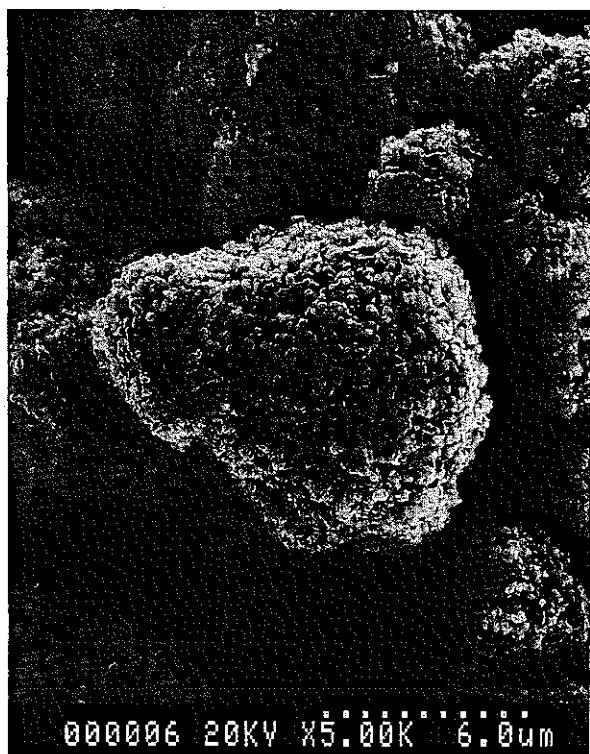


図3-d U-3のSEM写真像  
(超音波照射時間: 10M)

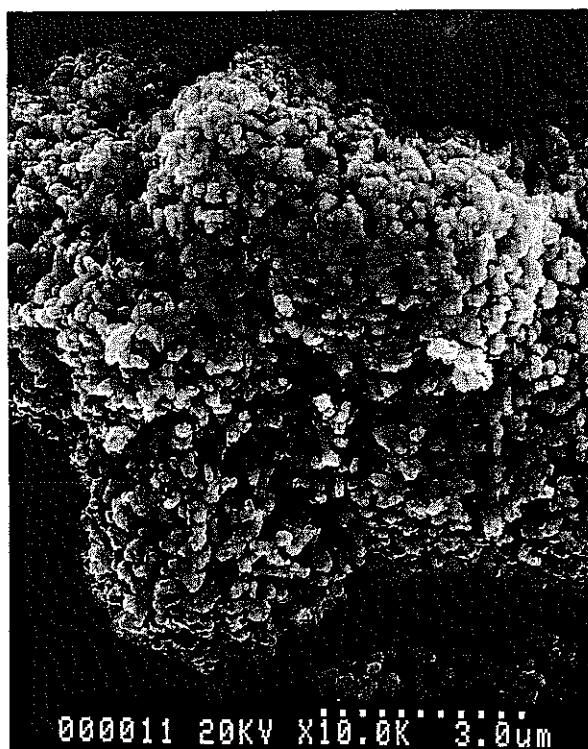
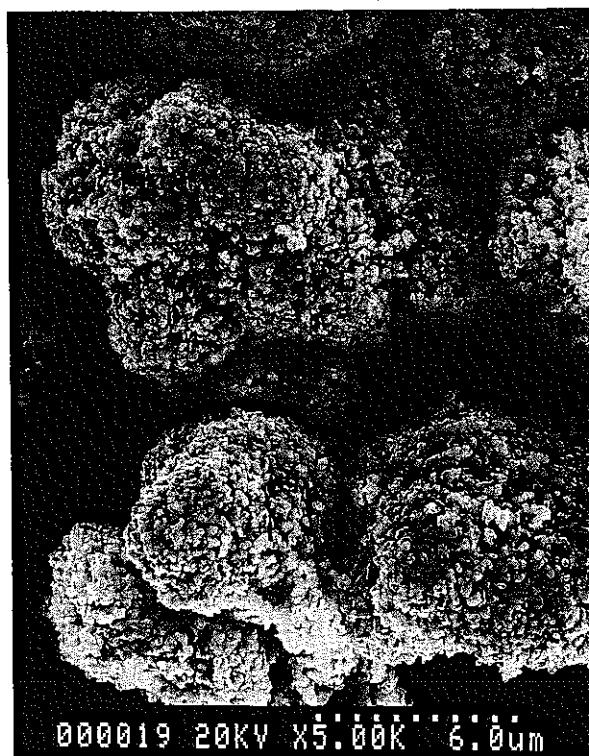
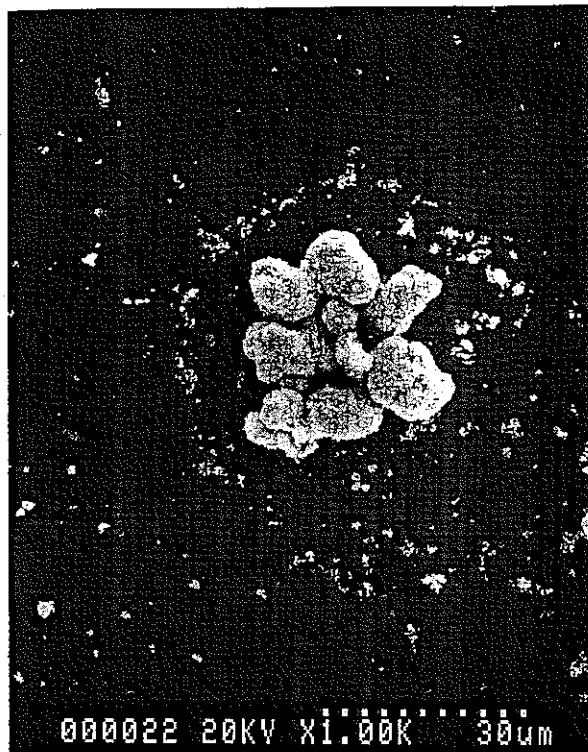


図3-e U-3のSEM写真像  
(超音波照射時間: 20M)

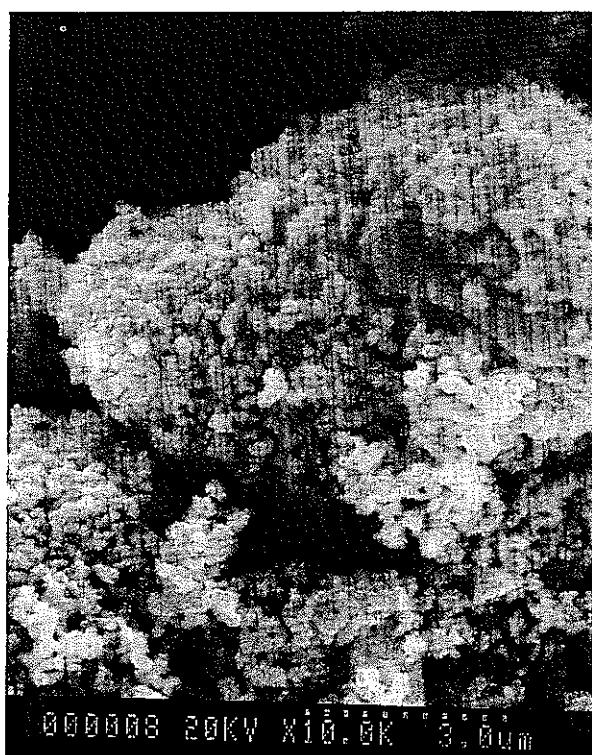
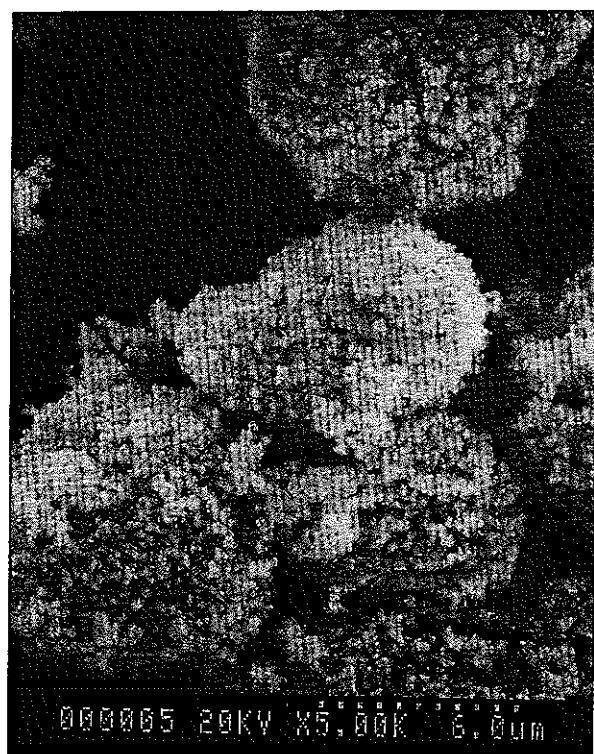
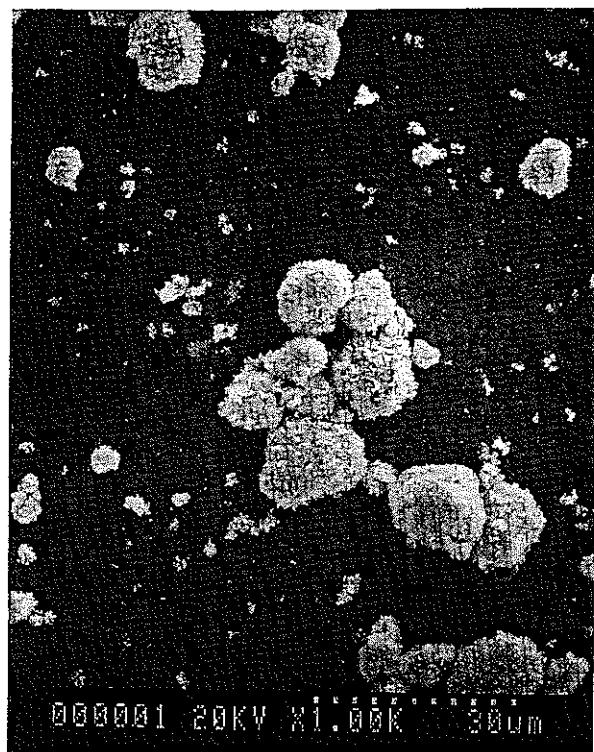


図4-a U-4のSEM写真像  
(超音波照射時間:0S)

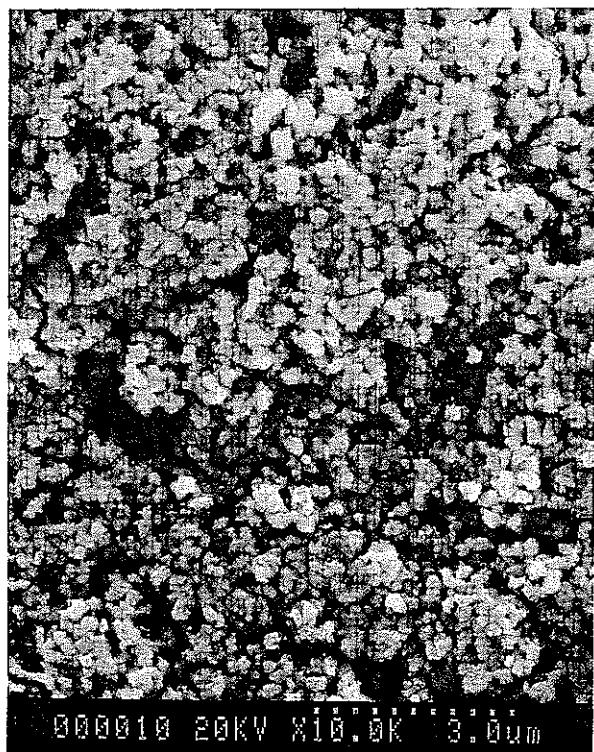
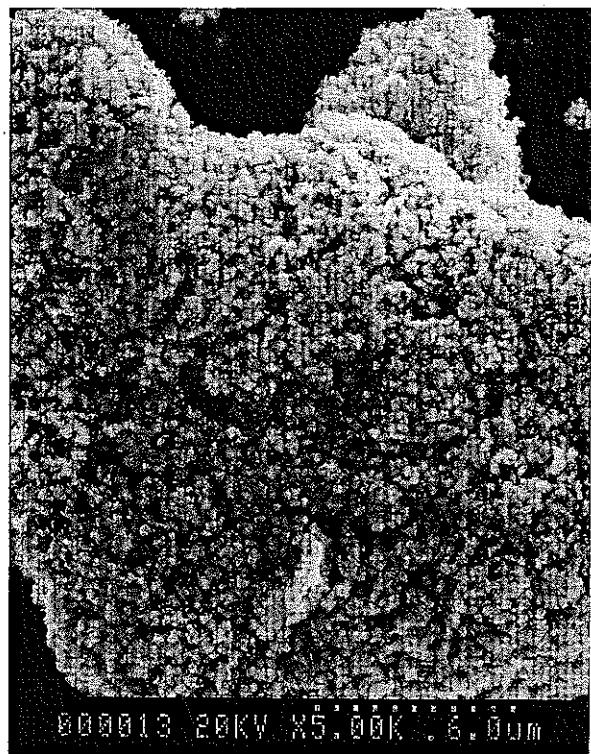
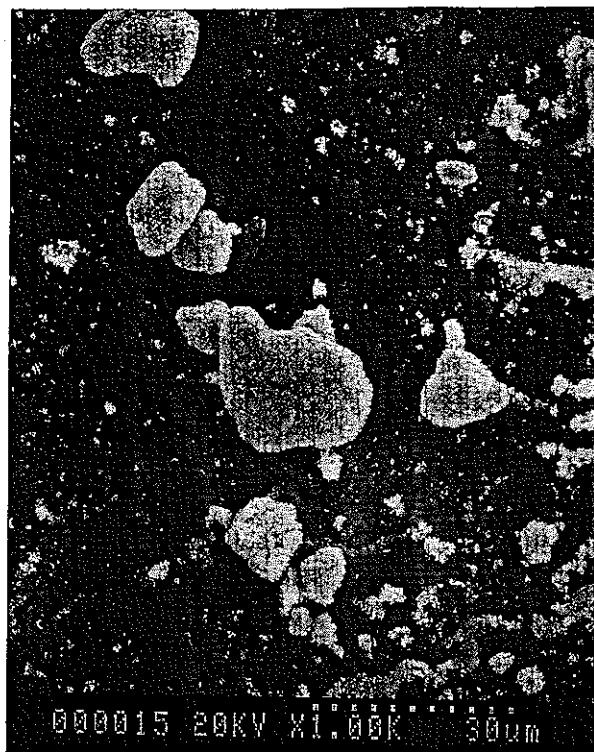


図4-b U-4のSEM写真像  
(超音波照射時間:180S)

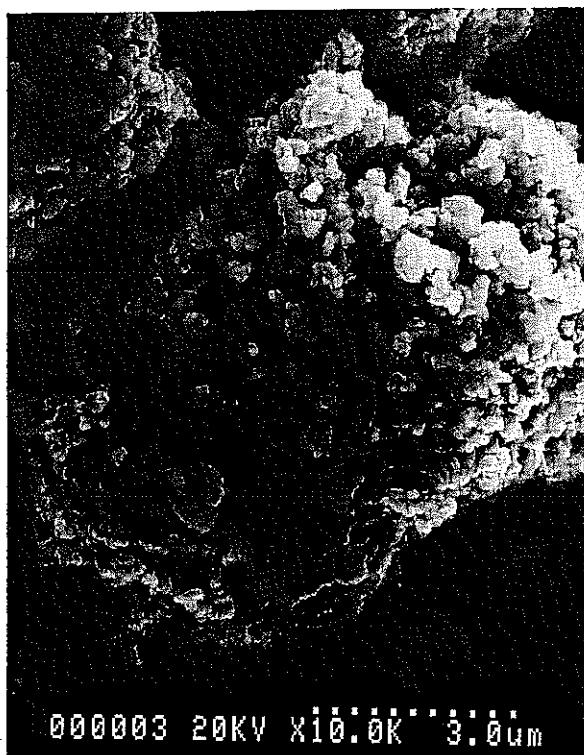


図4-c U-4のSEM写真像  
(超音波照射時間: 5M)

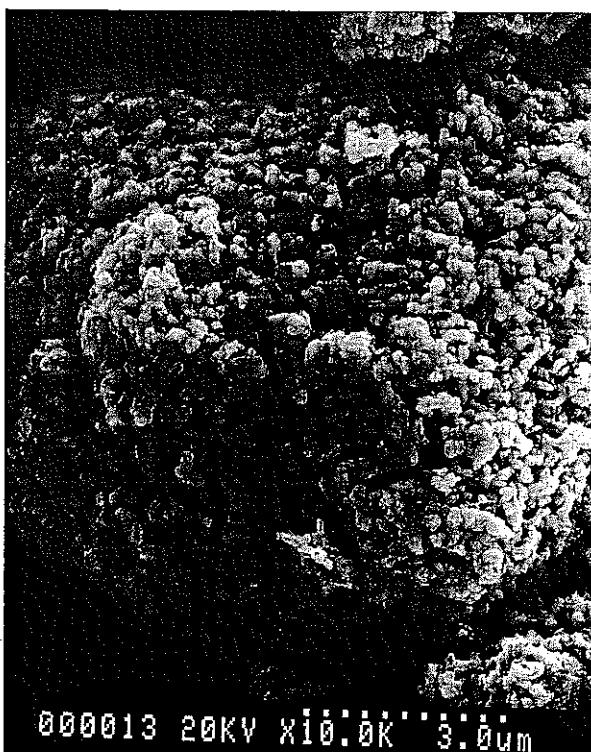
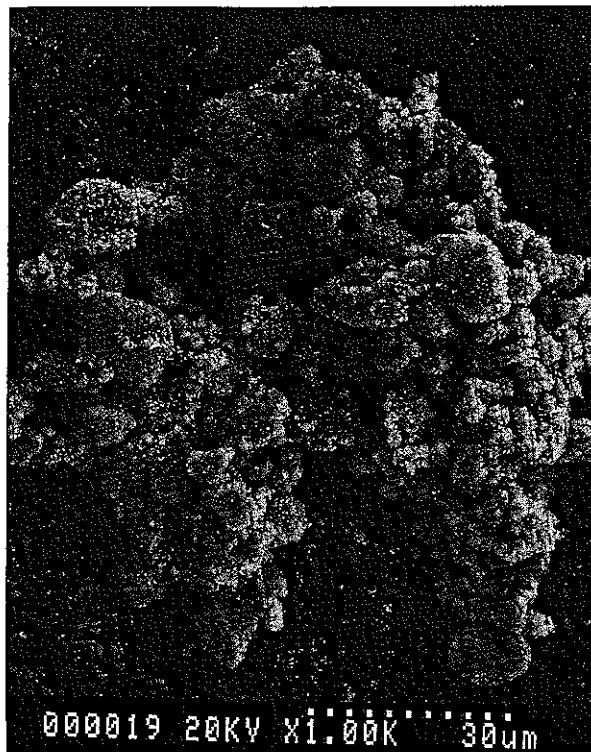


図4-d U-4のSEM写真像  
(超音波照射時間:40M)



図5-a P-1のSEM写真像  
(超音波照射時間:0S)

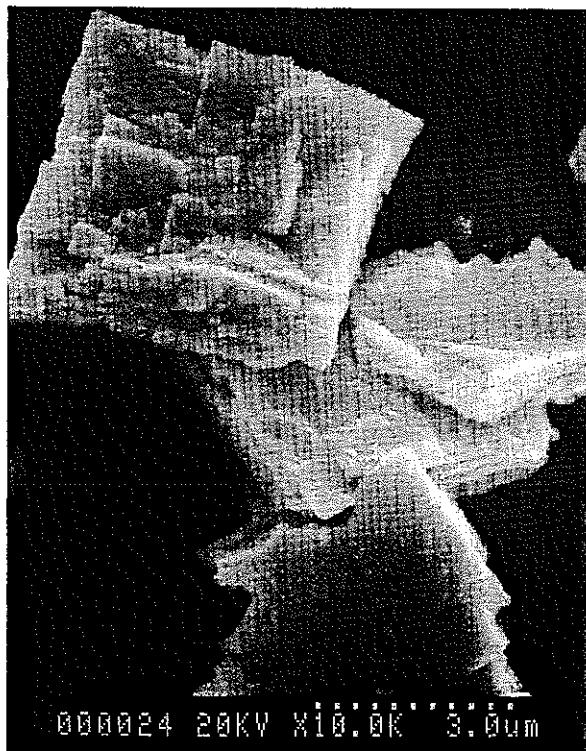
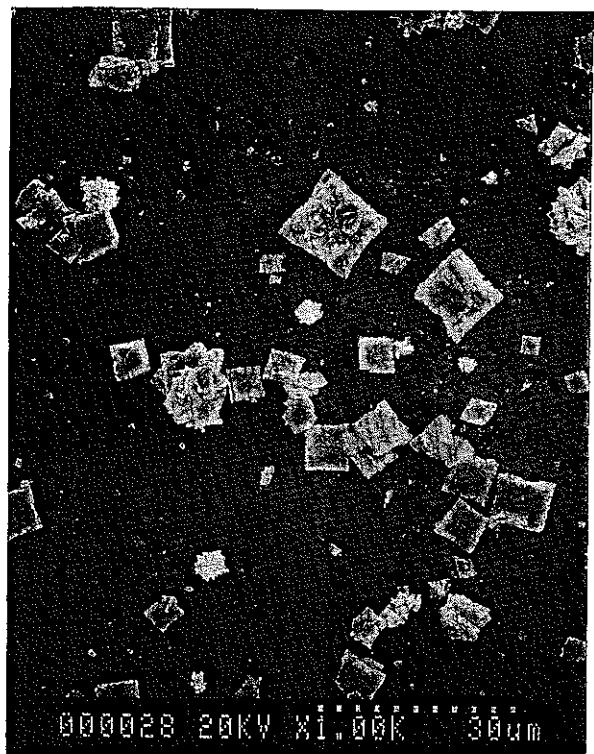


図5-b P-1のSEM写真像  
(超音波照射時間:180S)

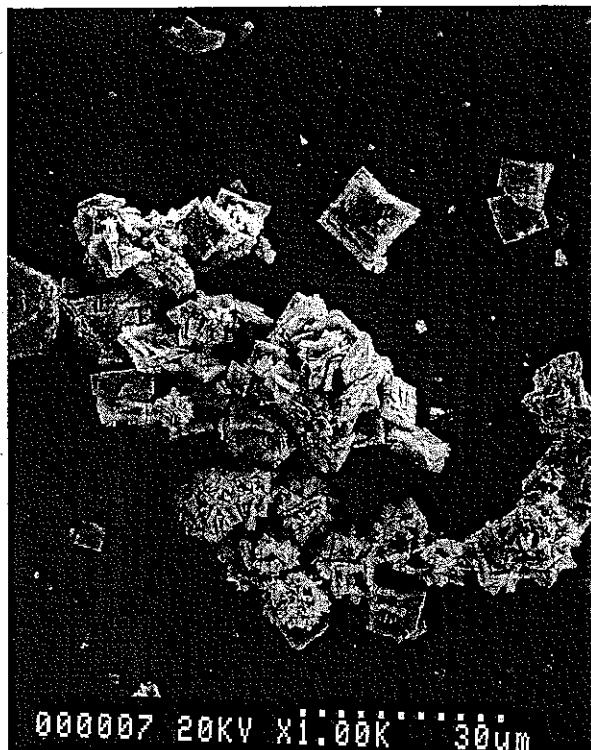


図5-c P-1のSEM写真像  
(超音波照射時間: 5M)



図5-d P-1のSEM写真像  
(超音波照射時間:60M)

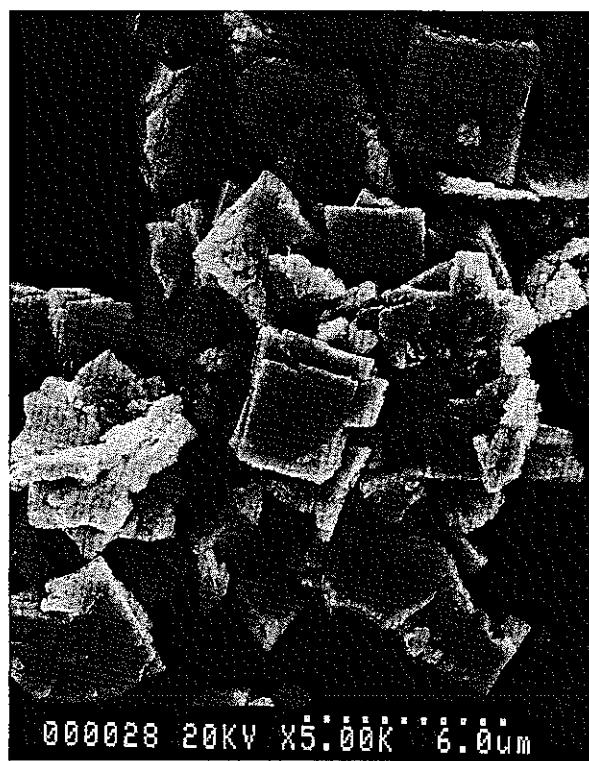
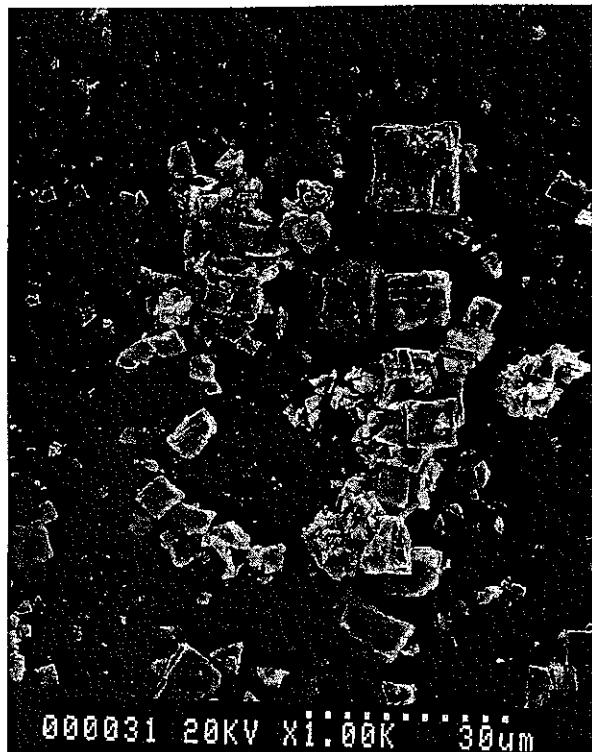


図5-e P-1のSEM写真像  
(超音波照射時間:150M)

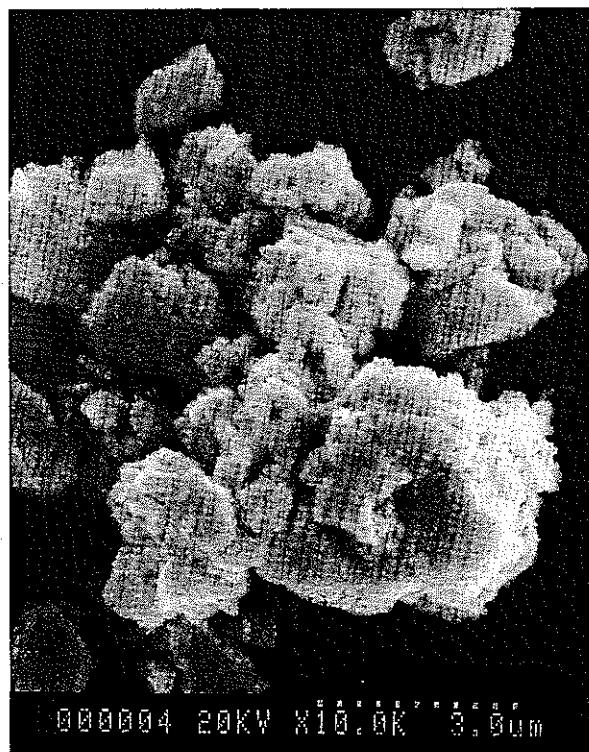
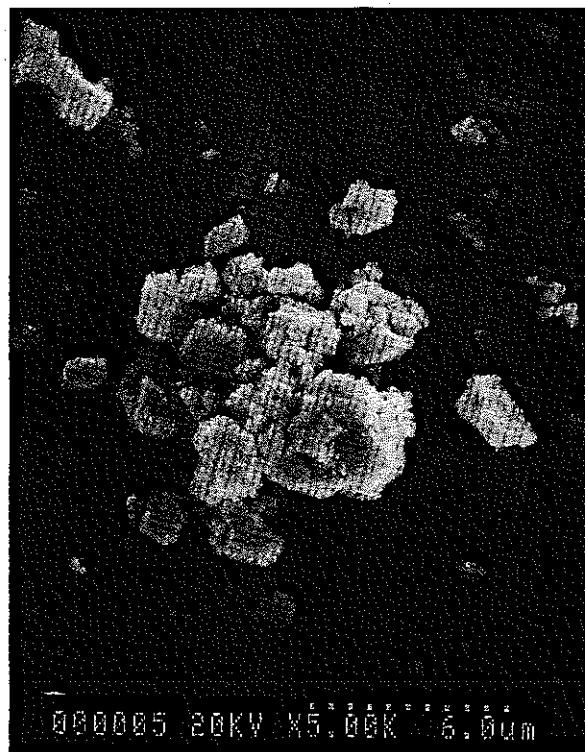
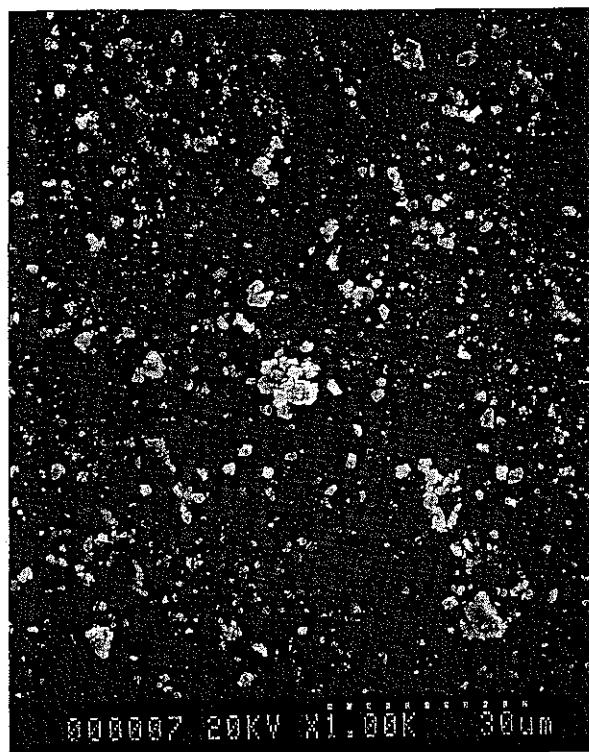


図6-a P-2のSEM写真像  
(超音波照射時間:0S)

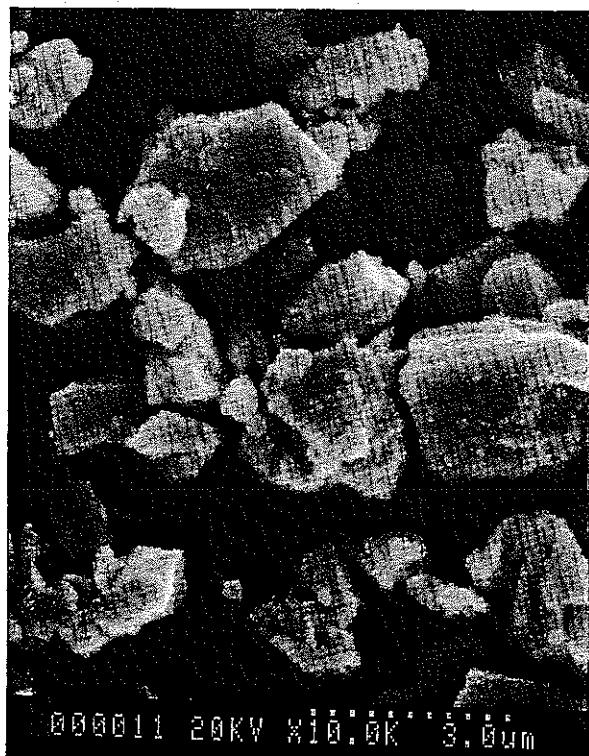
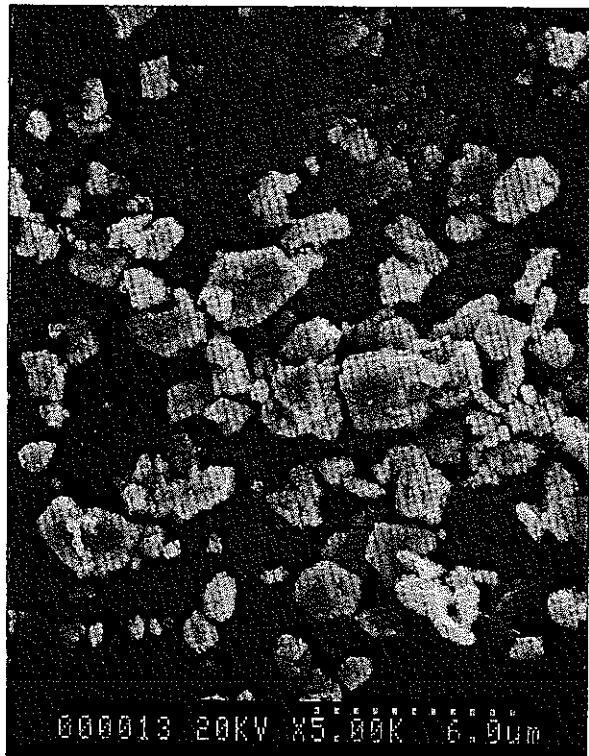


図6-b P-2のSEM写真像  
(超音波照射時間: 180S)

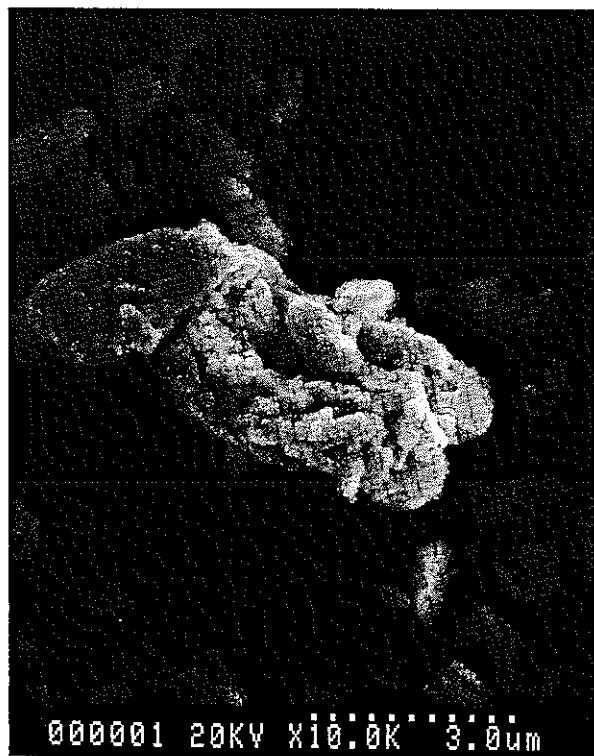
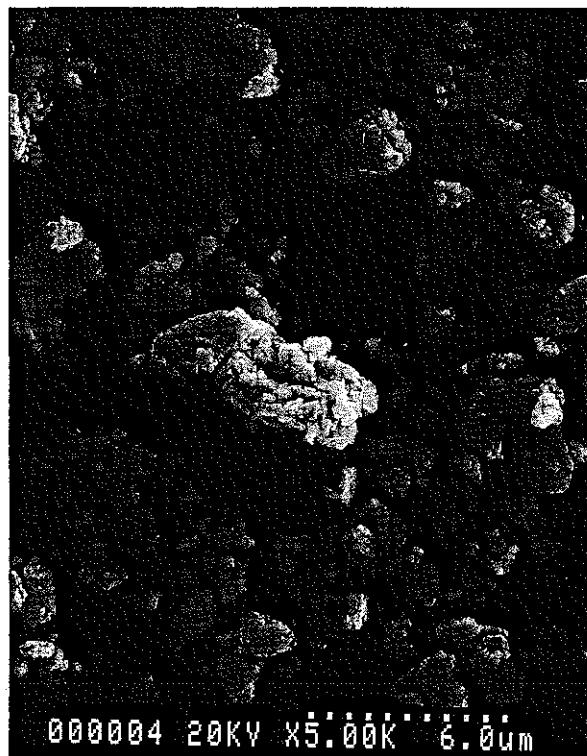
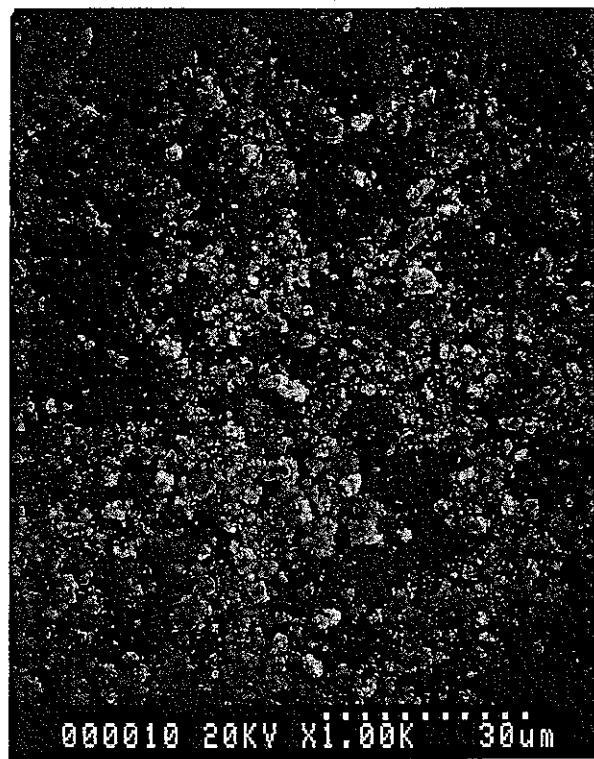


図6-c P-2のSEM写真像  
(超音波照射時間:90M)

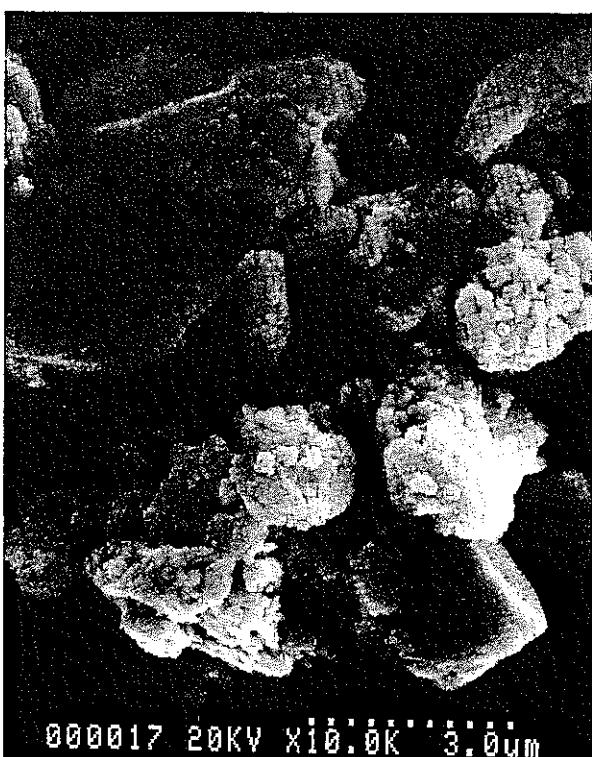
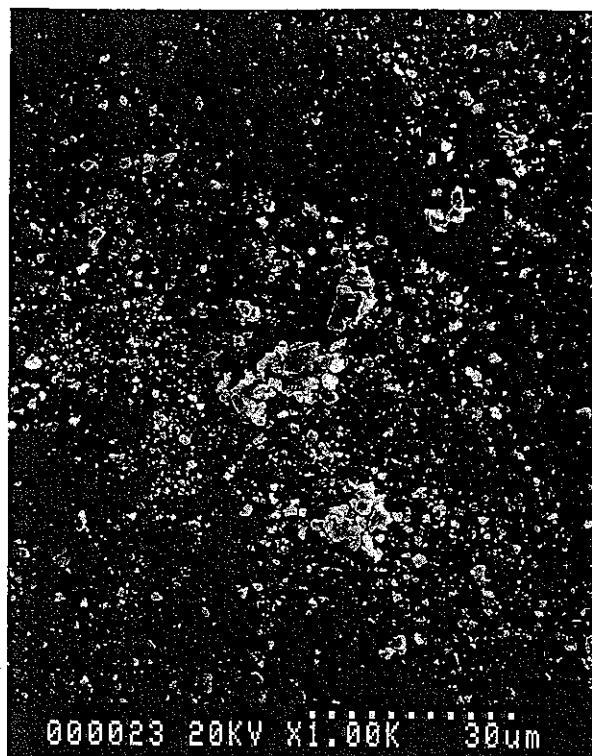


図6-d P-2のSEM写真像  
(超音波照射時間:5M)

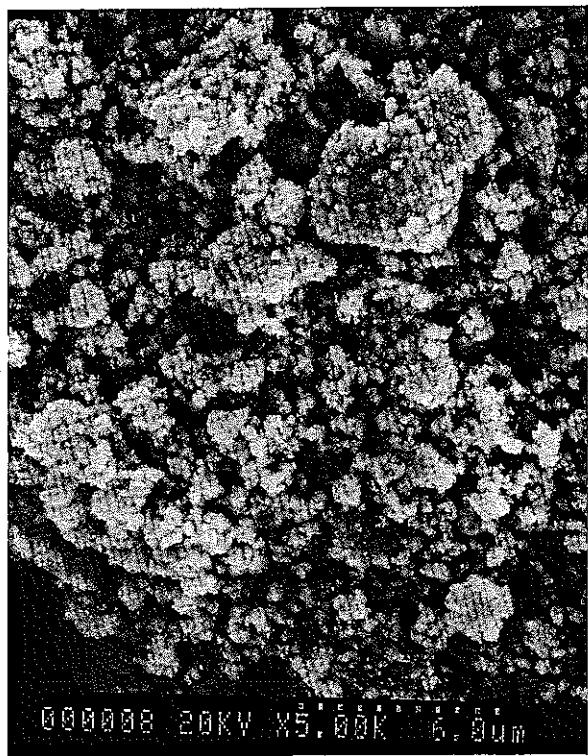
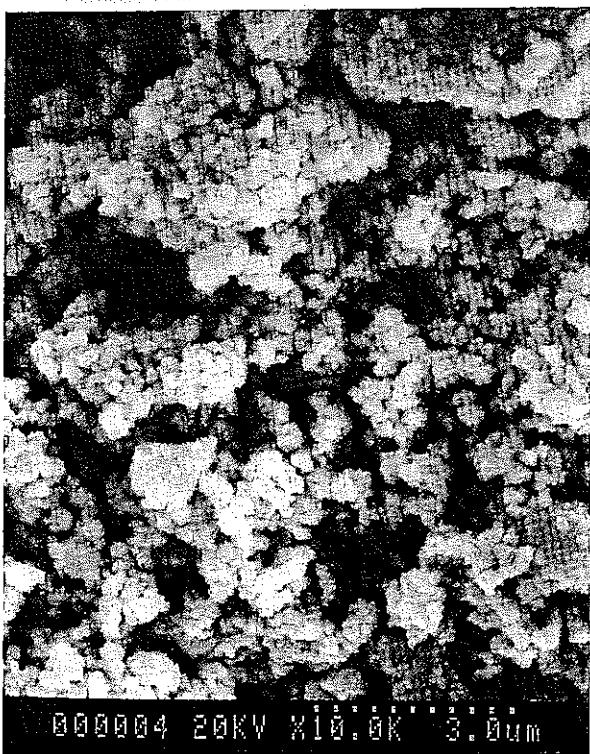
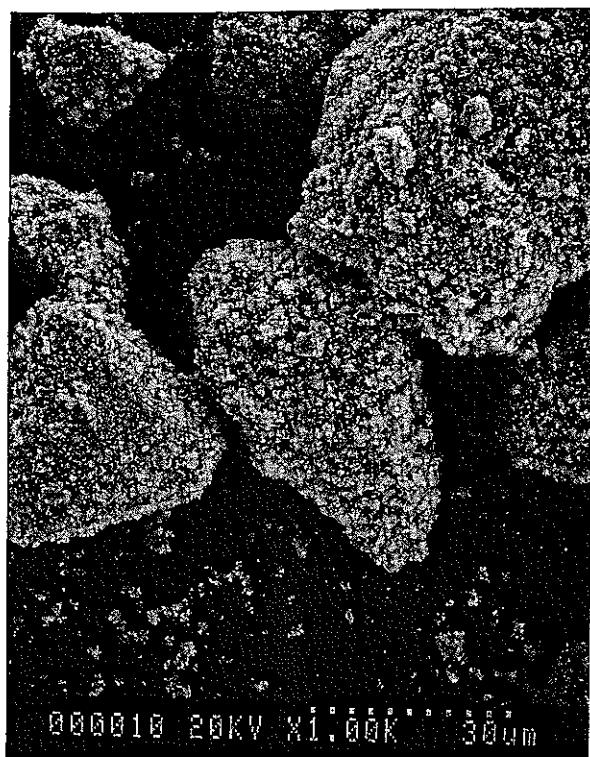


図7-a M-1のSEM写真像  
(超音波照射時間:0S)

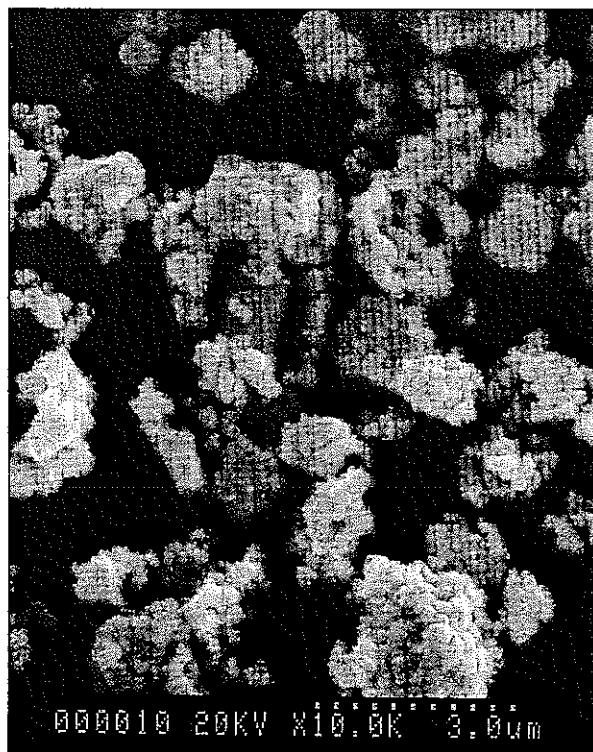
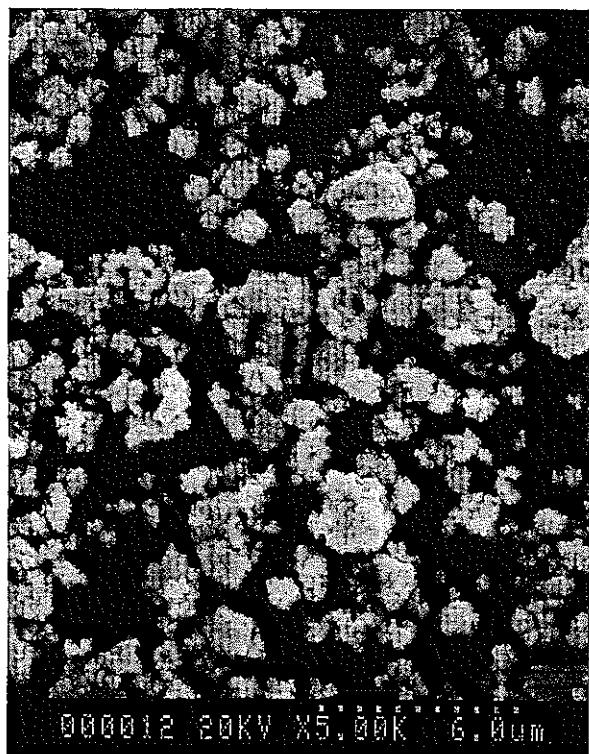
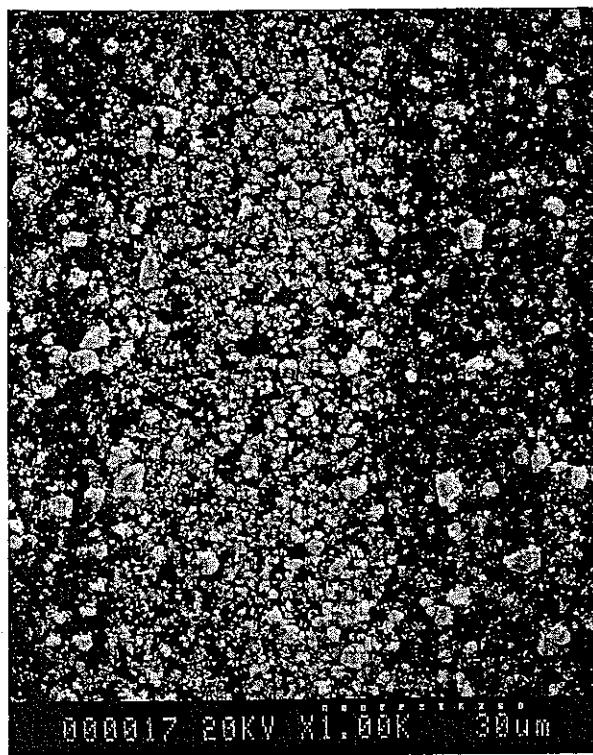


図7-b M-1のSEM写真像  
(超音波照射時間:180S)



図7-c M-1のSEM写真像  
(超音波照射時間: 5M)

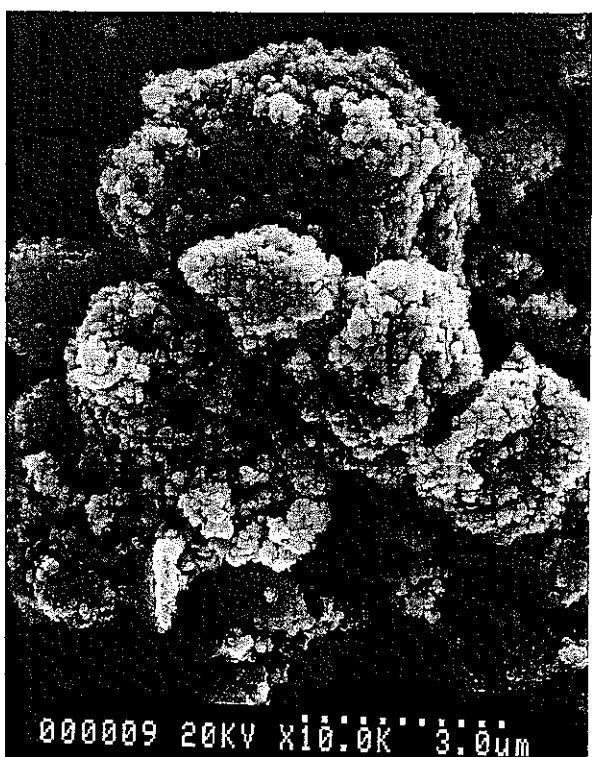
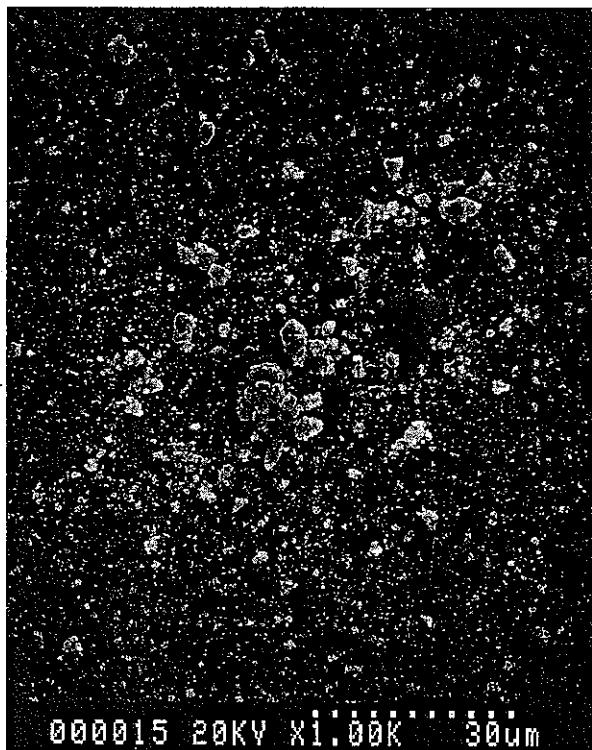


図7-d M-1のSEM写真像  
(超音波照射時間:40M)

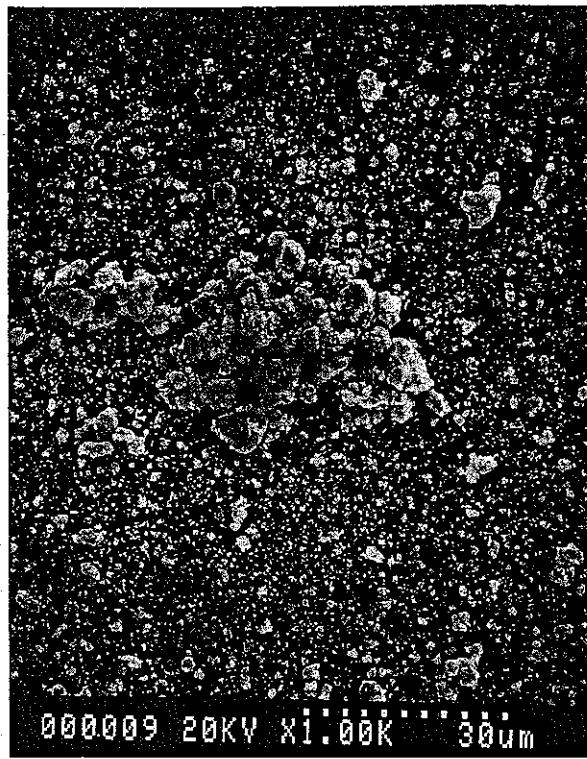


図7-e M-1のSEM写真像  
(超音波照射時間:60M)

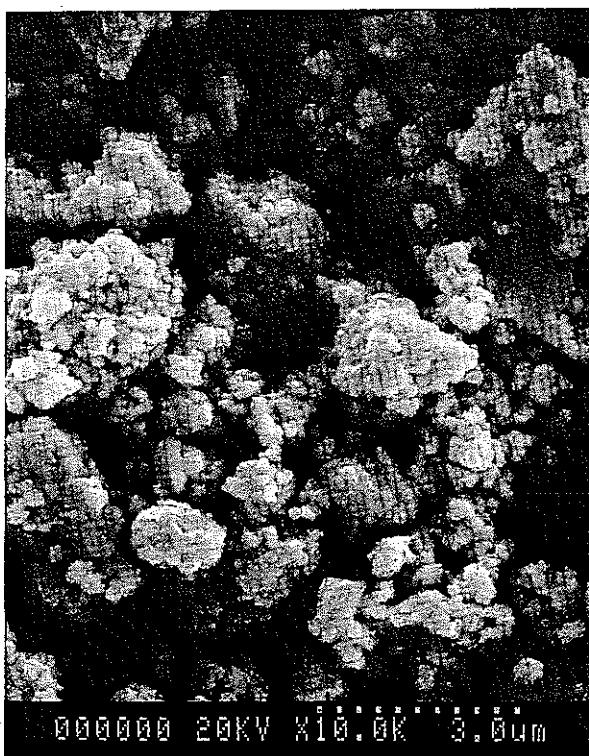
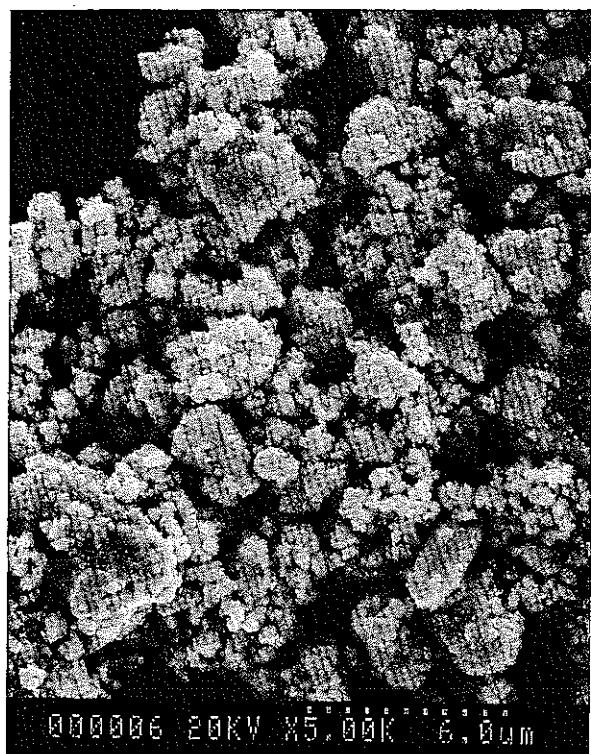
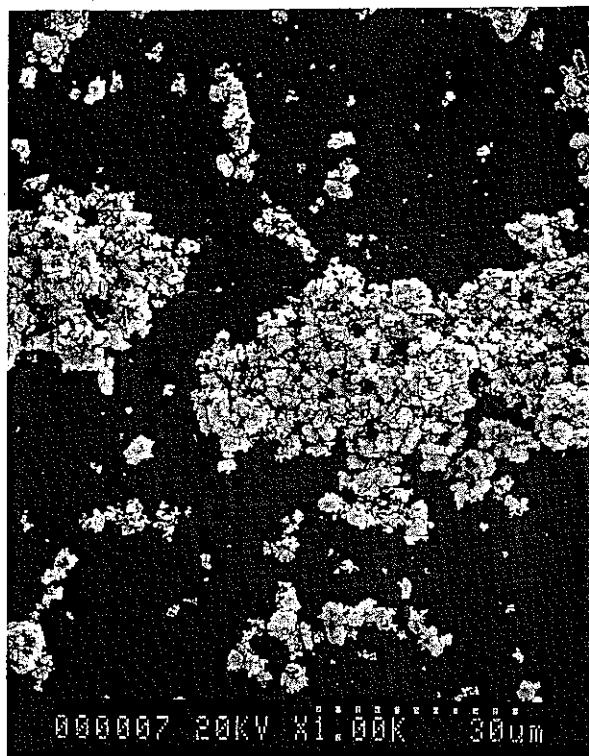


図8-a M-2のSEM写真像  
(超音波照射時間:0S)

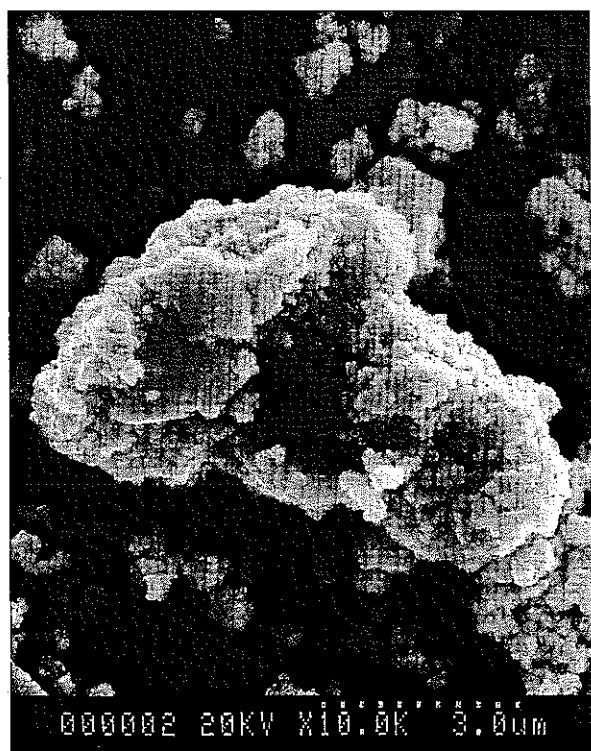
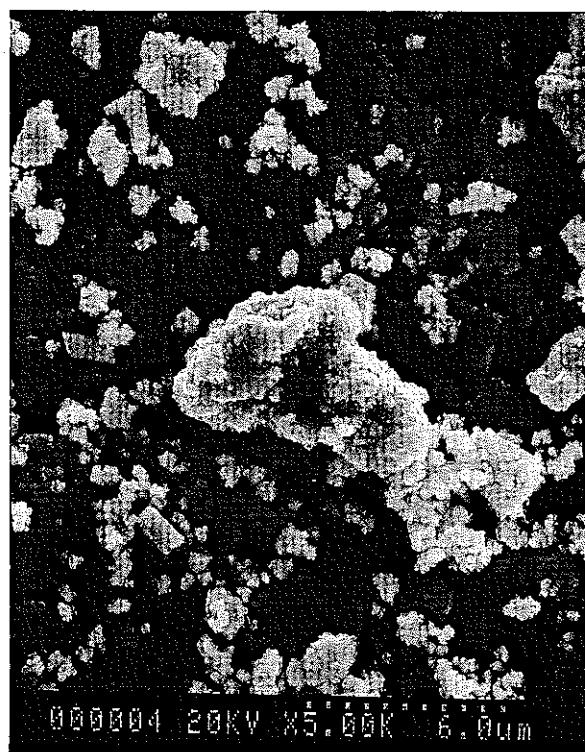
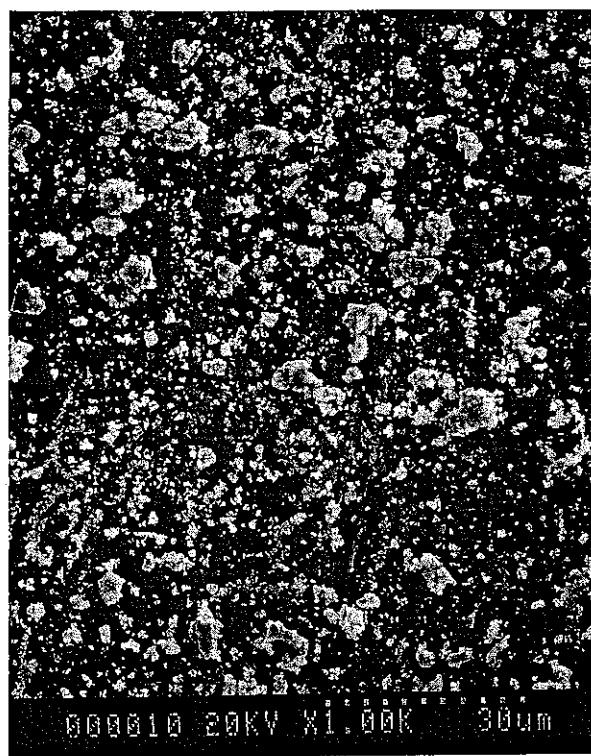


図8-b M-2のSEM写真像  
(超音波照射時間:180S)

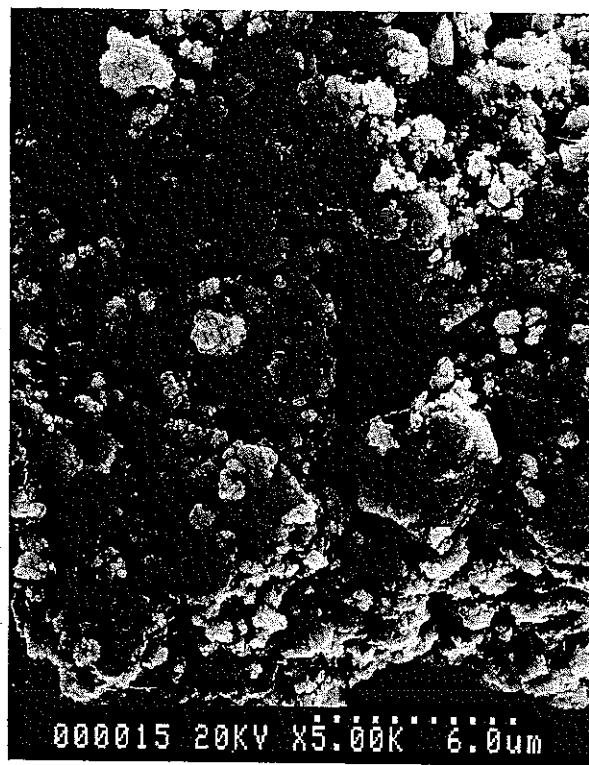
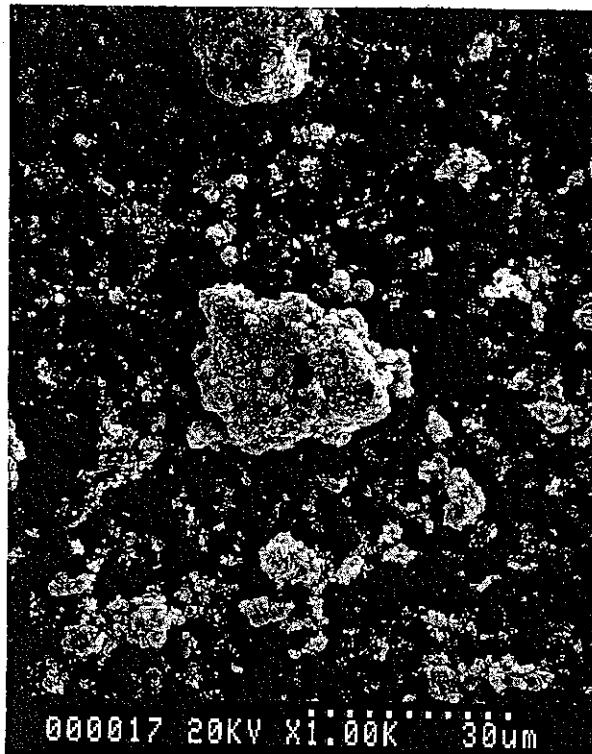


図8-c M-2のSEM写真像  
(超音波照射時間: 5M)

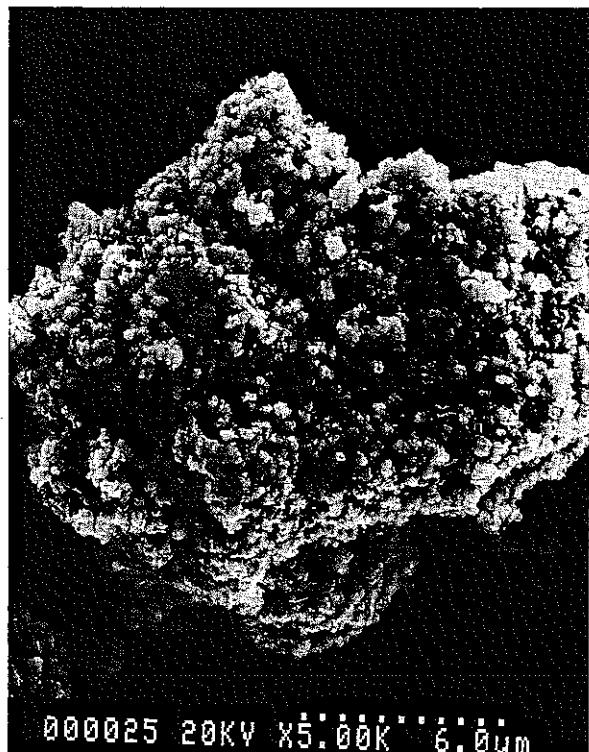
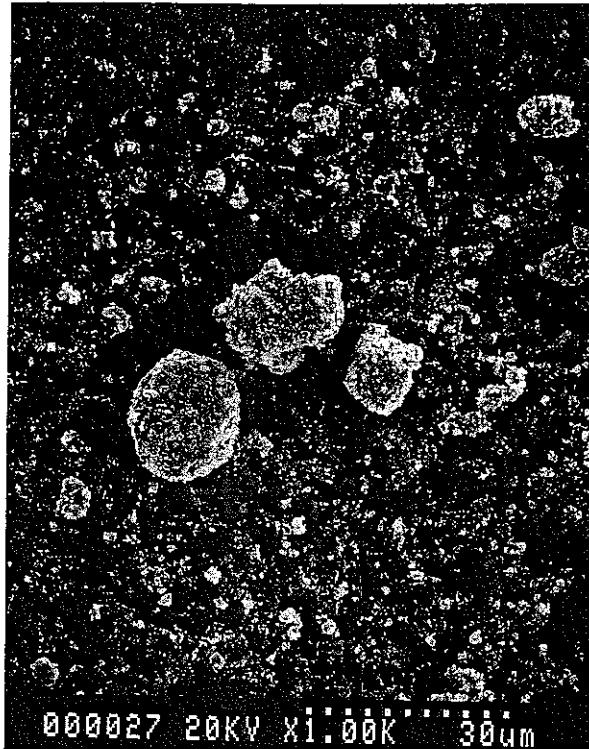


図8-d M-2のSEM写真像  
(超音波照射時間:40M)

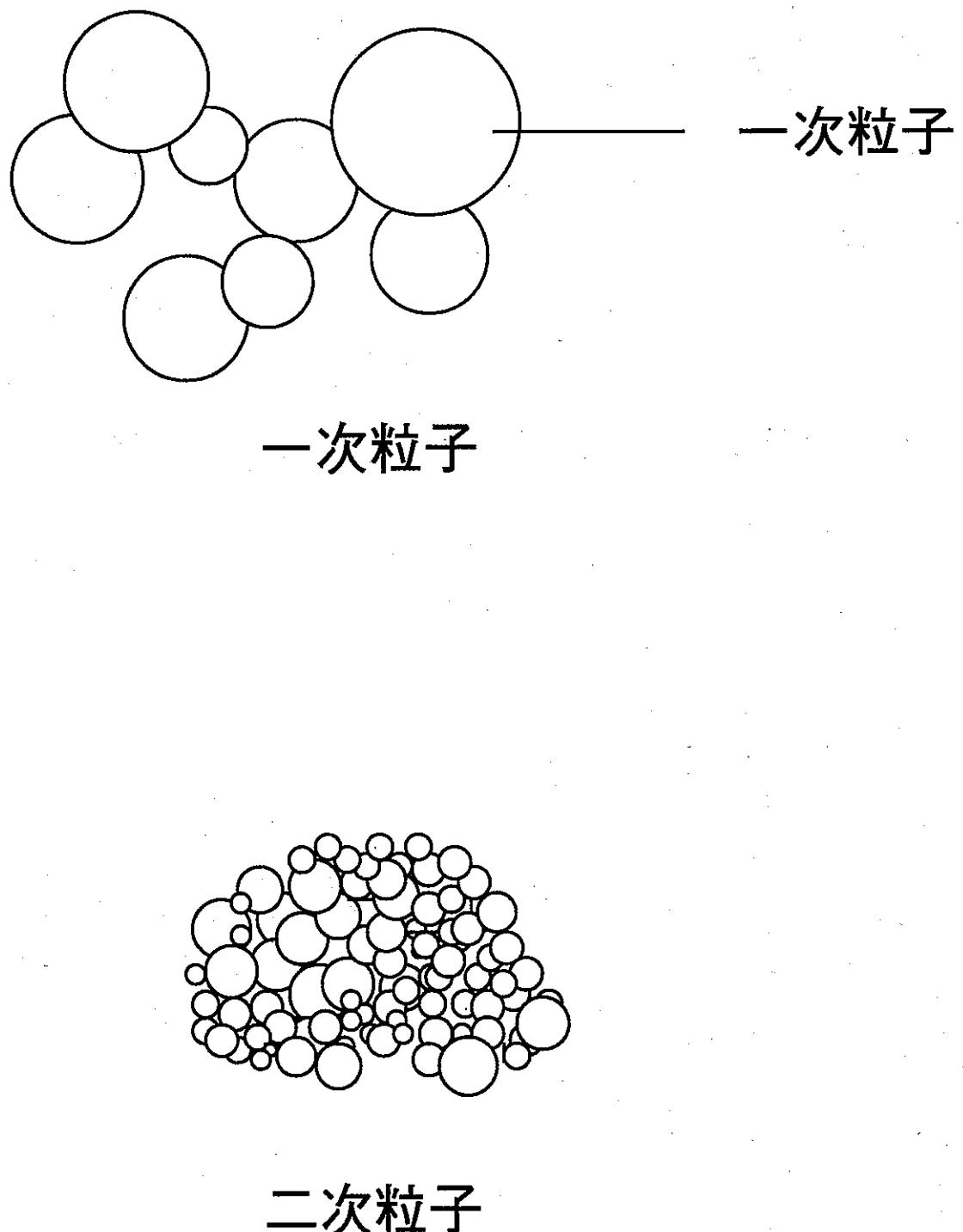


図9 一次粒子と二次粒子

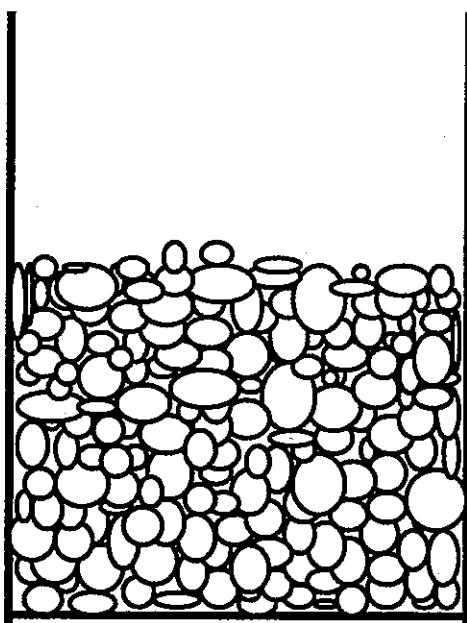


図10-a

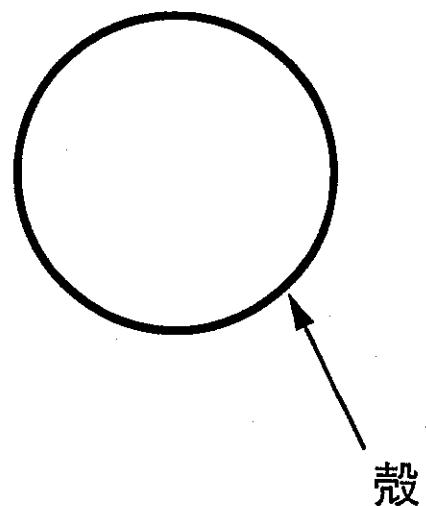


図10-b

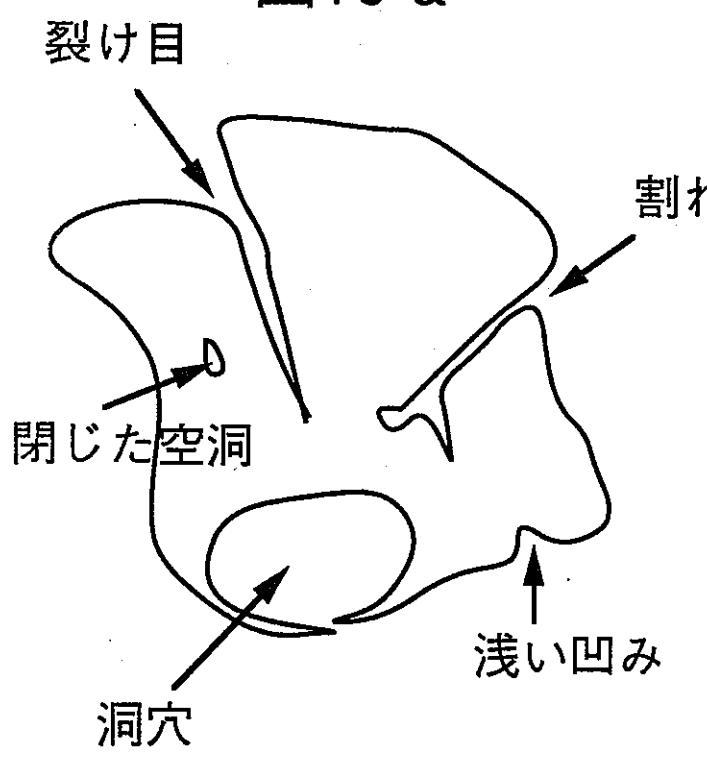


図10-c

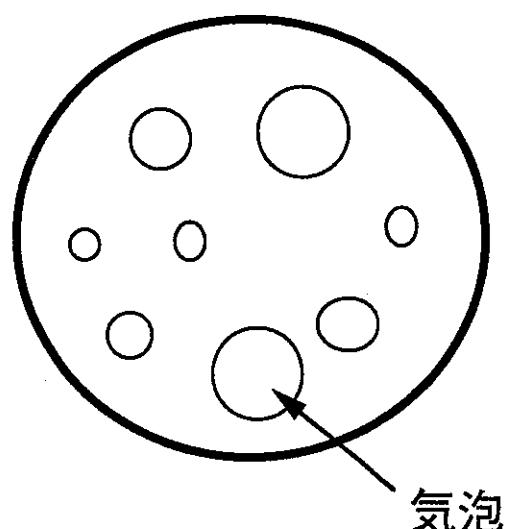


図10-d

図10 体積測定法に基づく密度

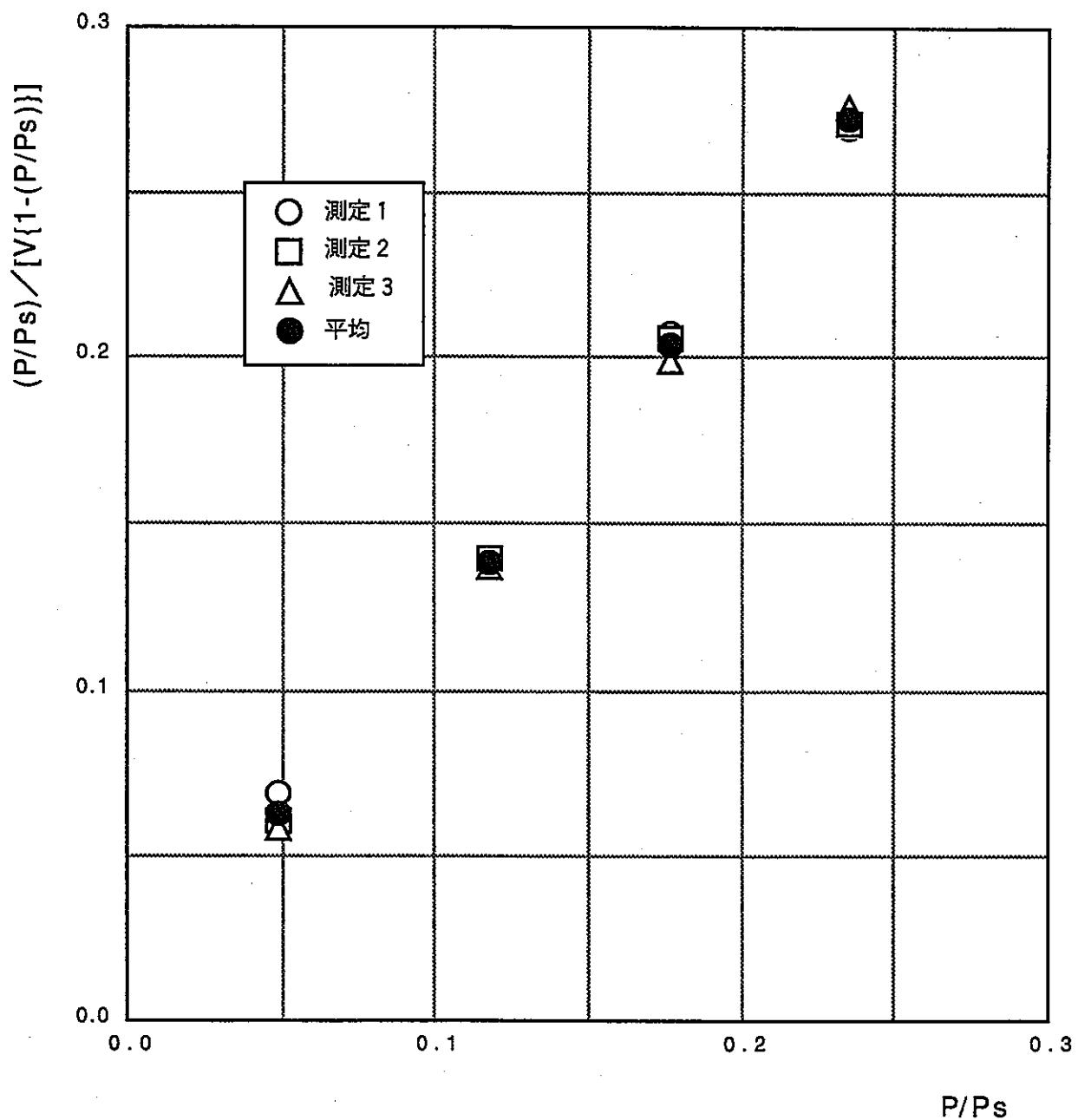


図11 U-1のBET多点法プロット図

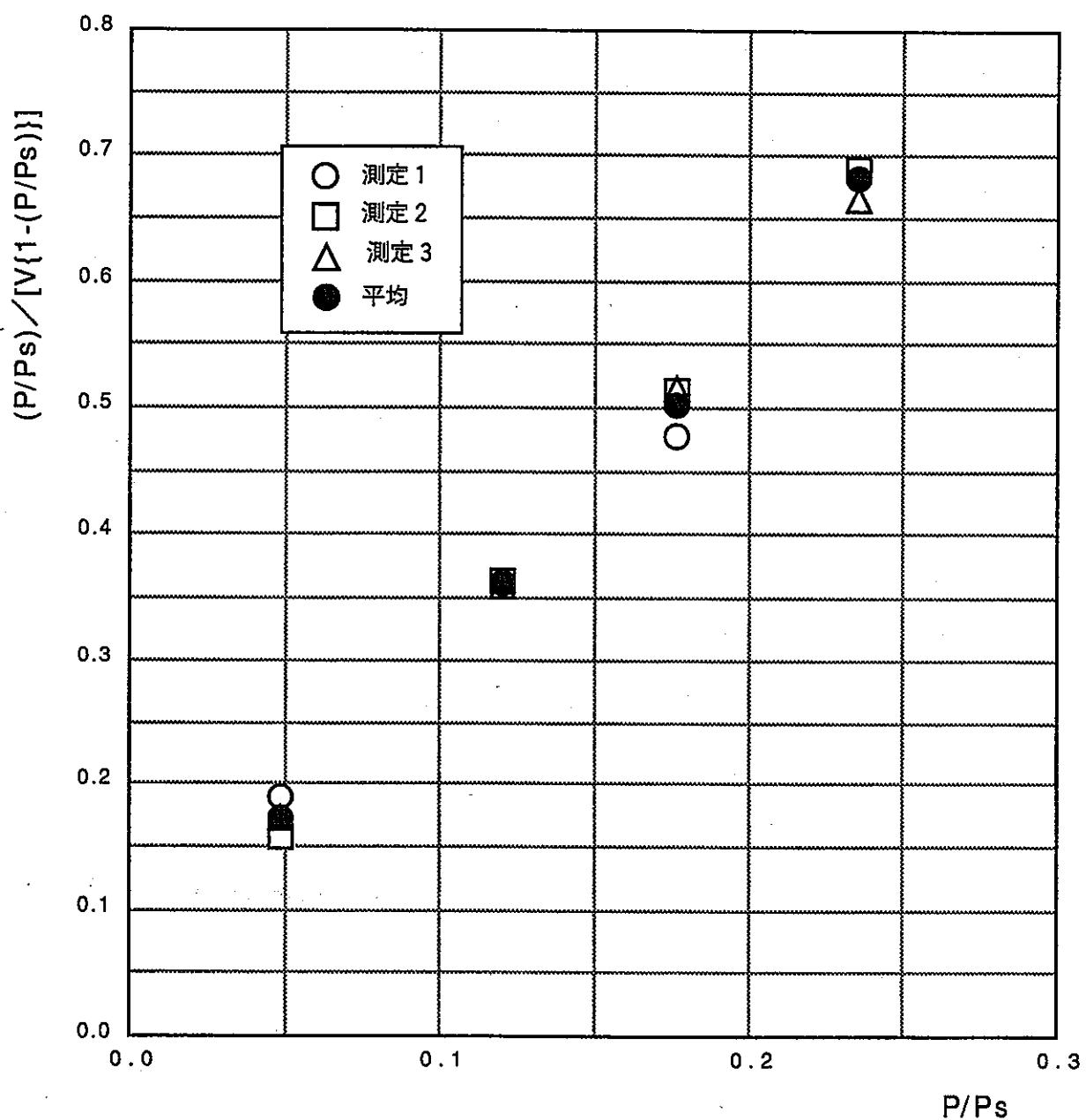


図12 U-2のBET多点法プロット図

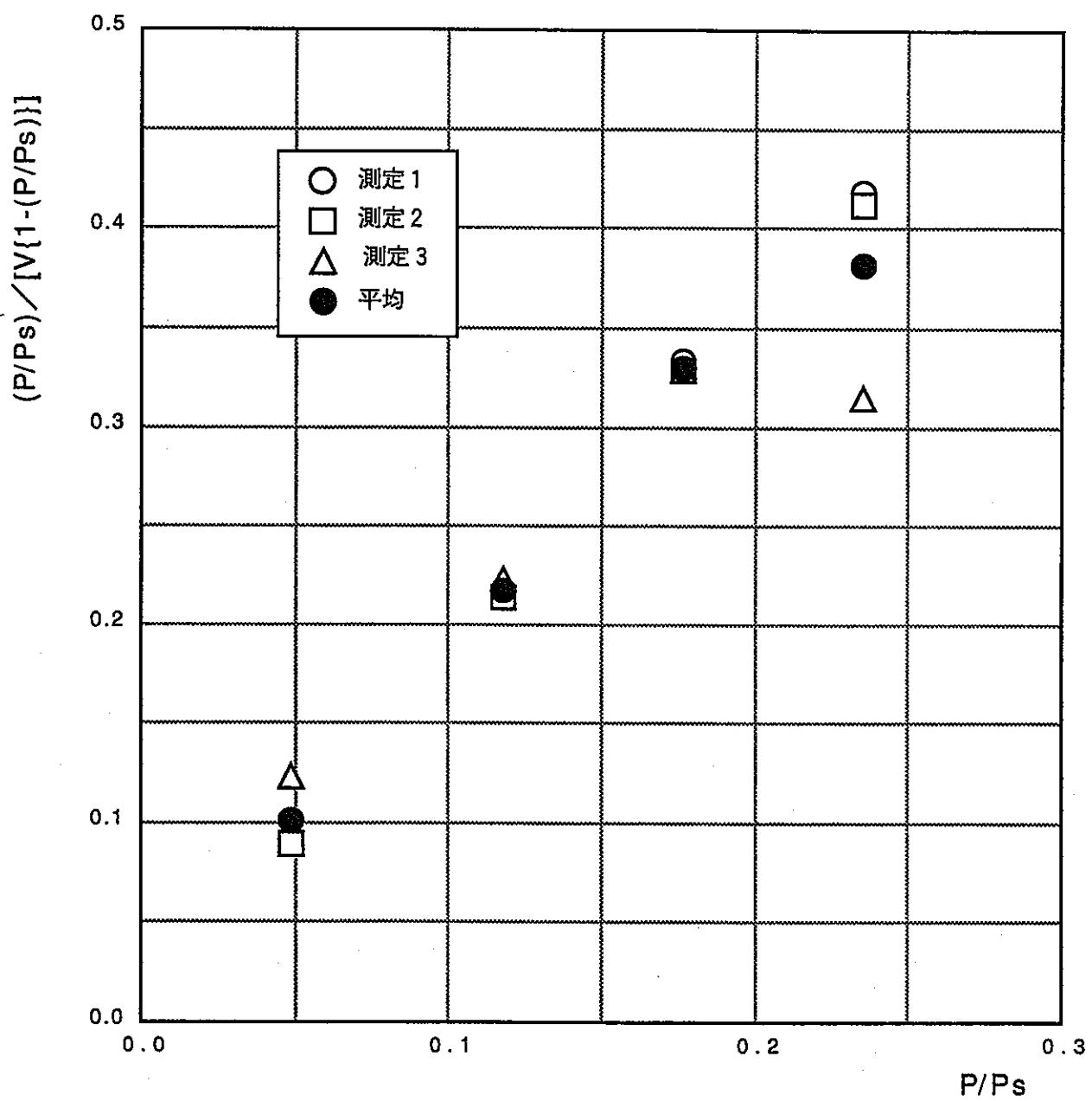


図13 U-3のBET多点法プロット図

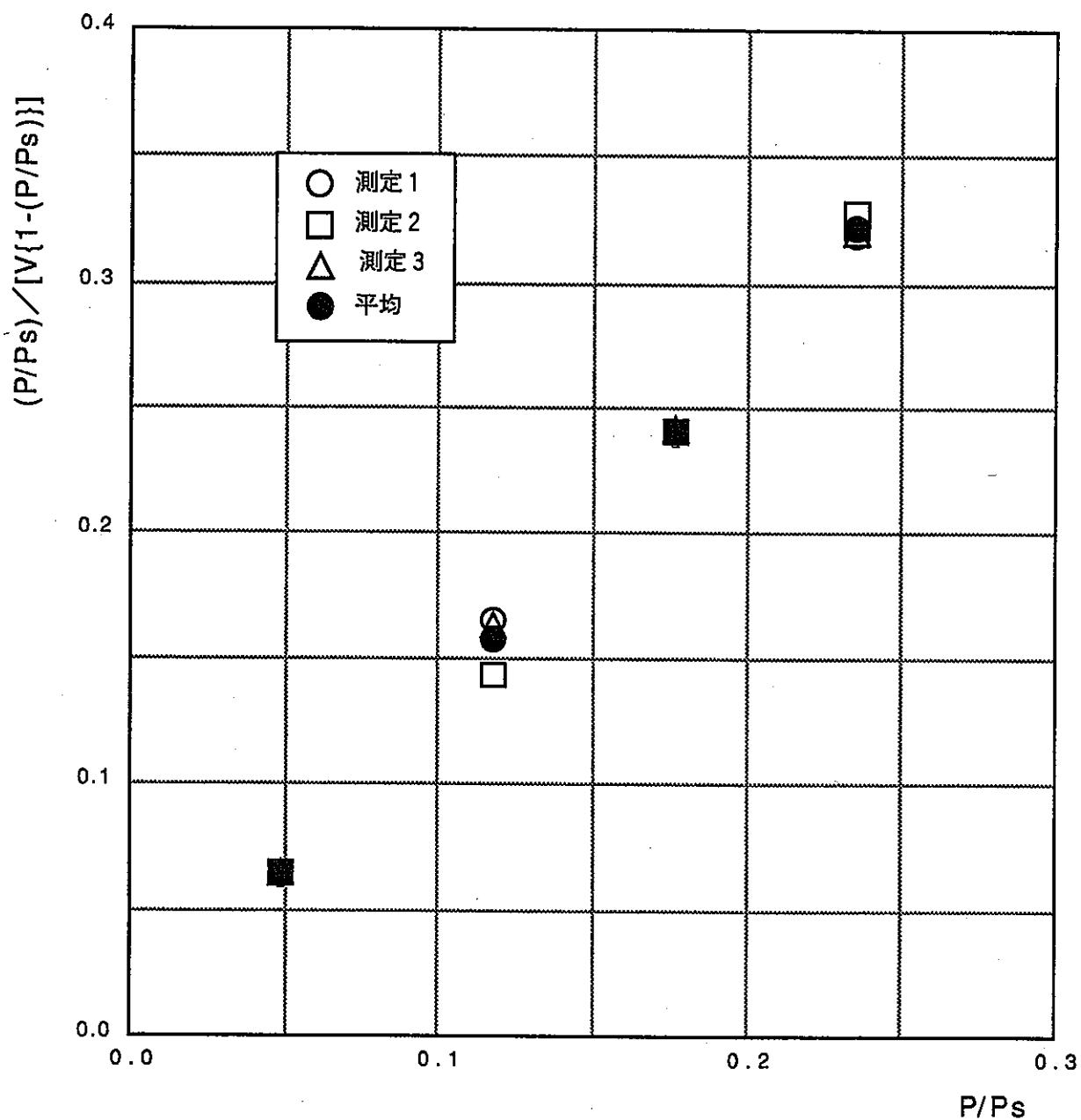


図14 U-4のBET多点法プロット図

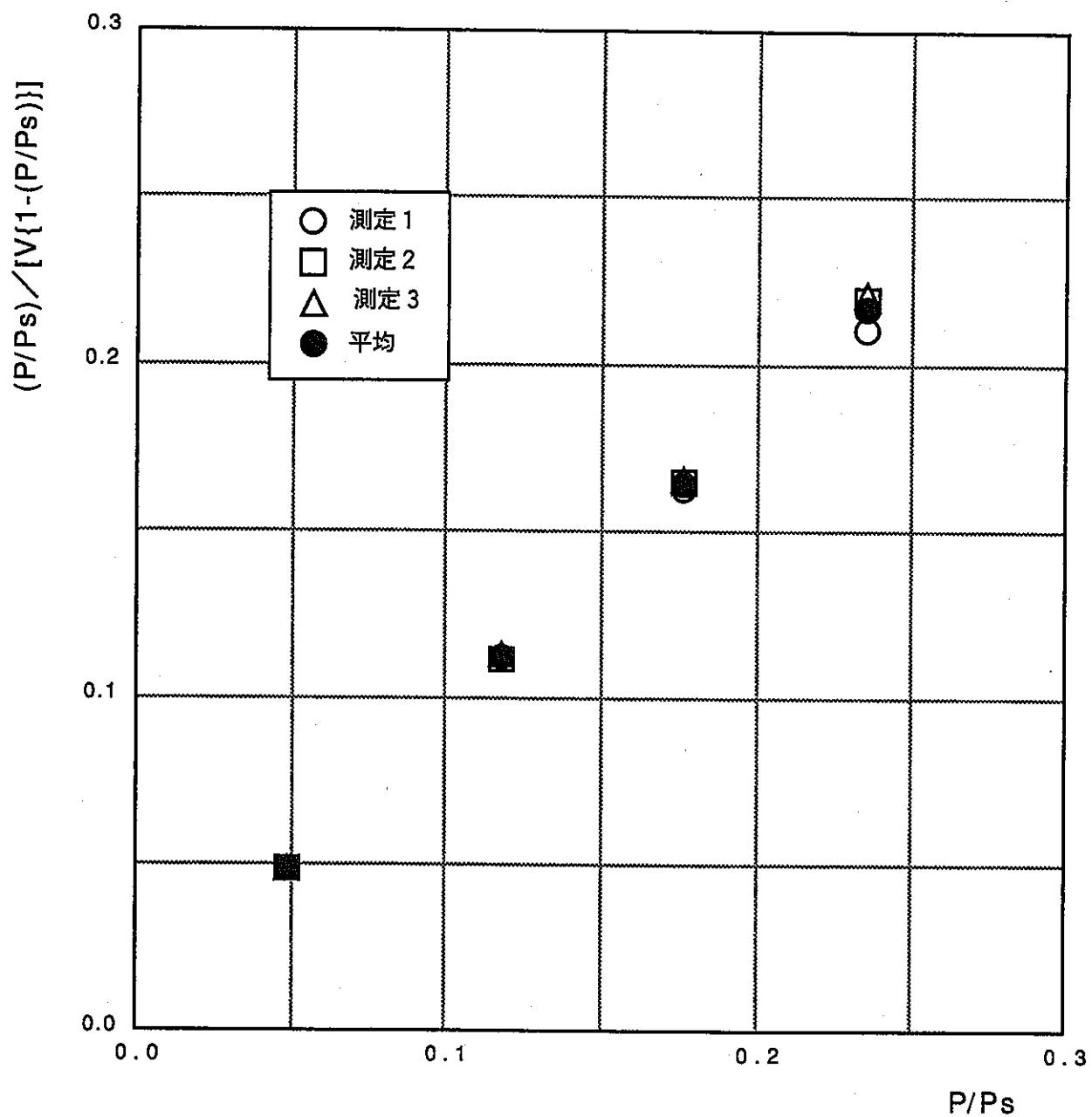


図15 P-1のBET多点法プロット図

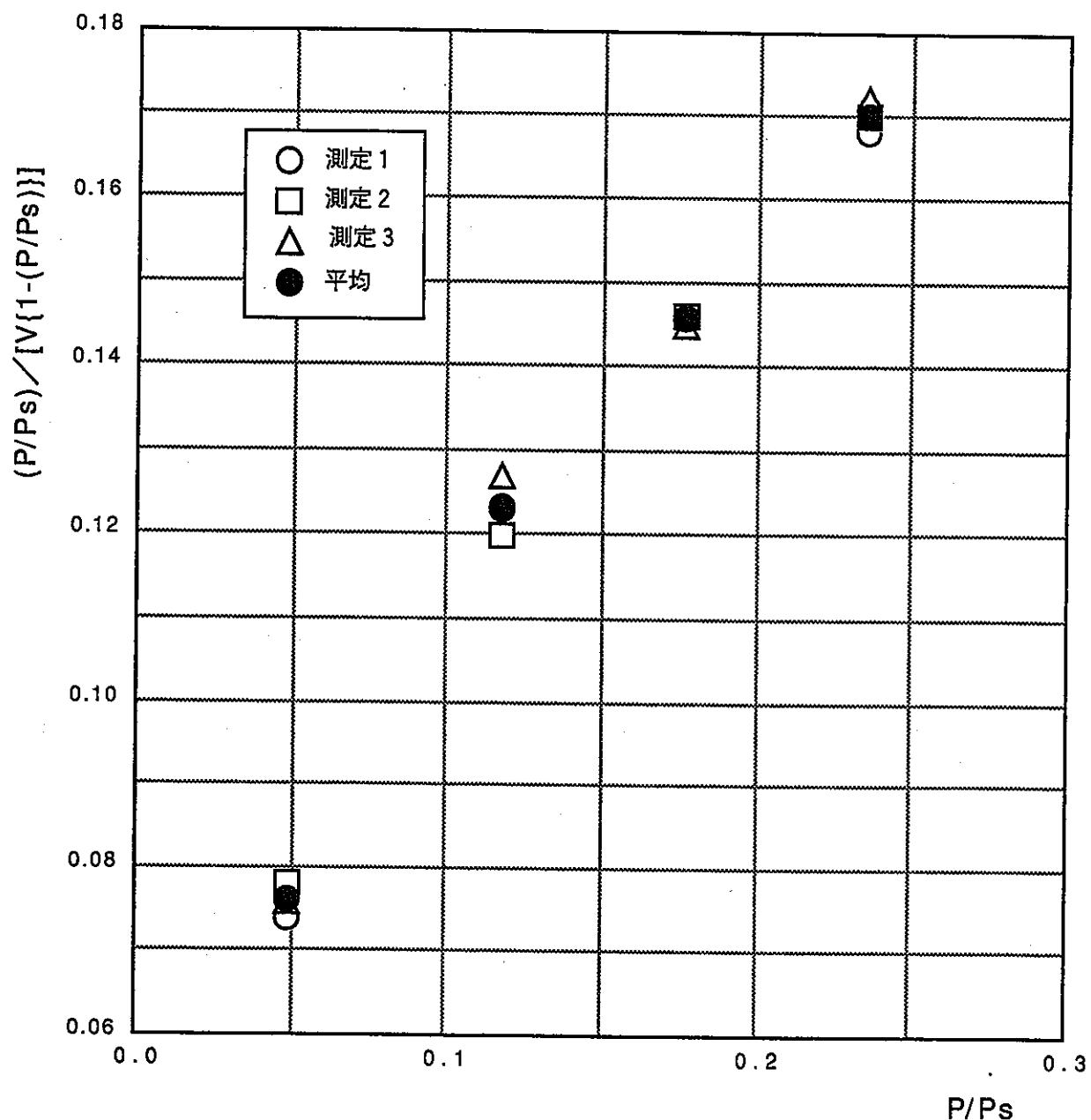


図16 P-2のBET多点法プロット図

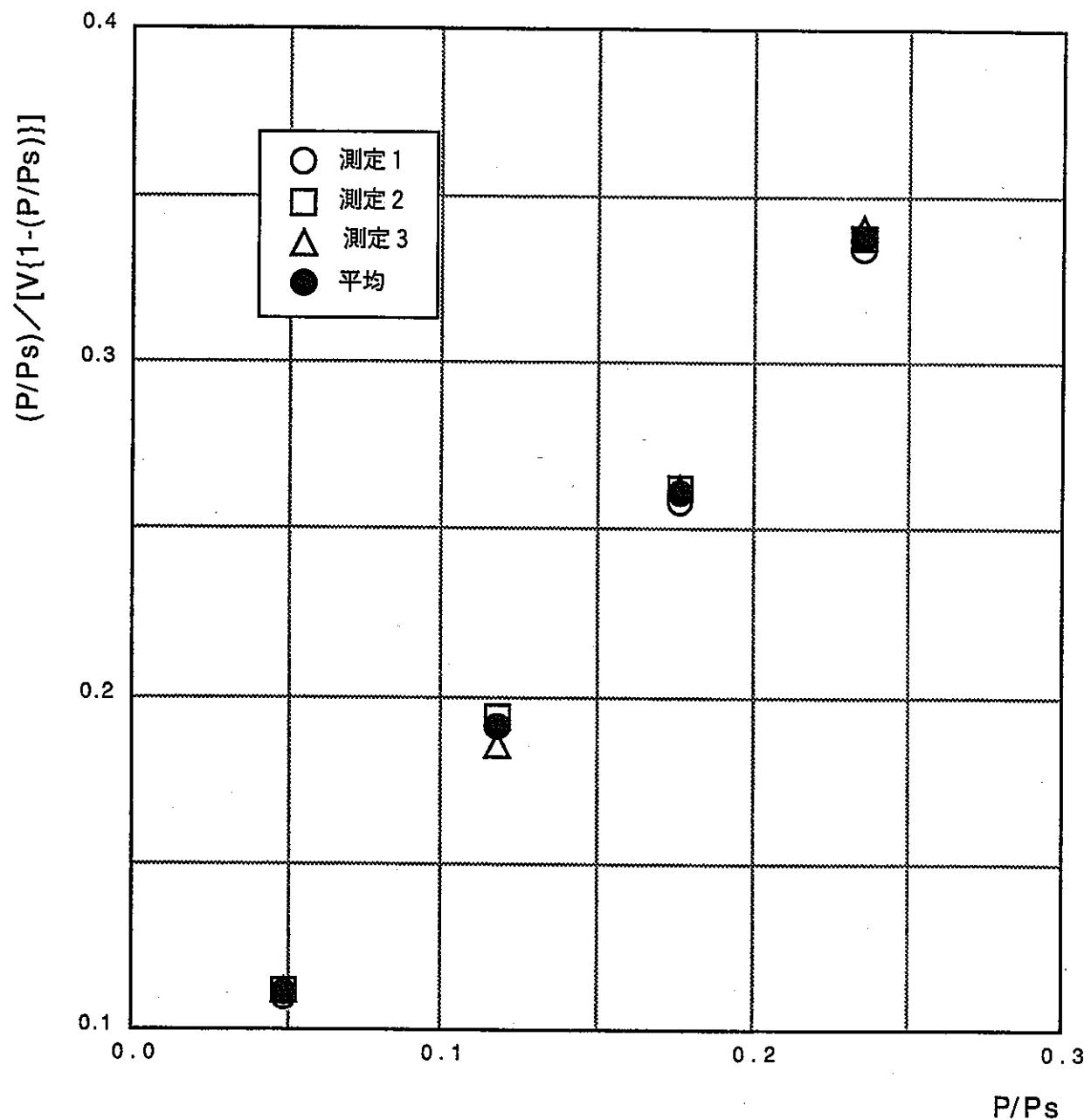


図17 M-1のBET多点法プロット図

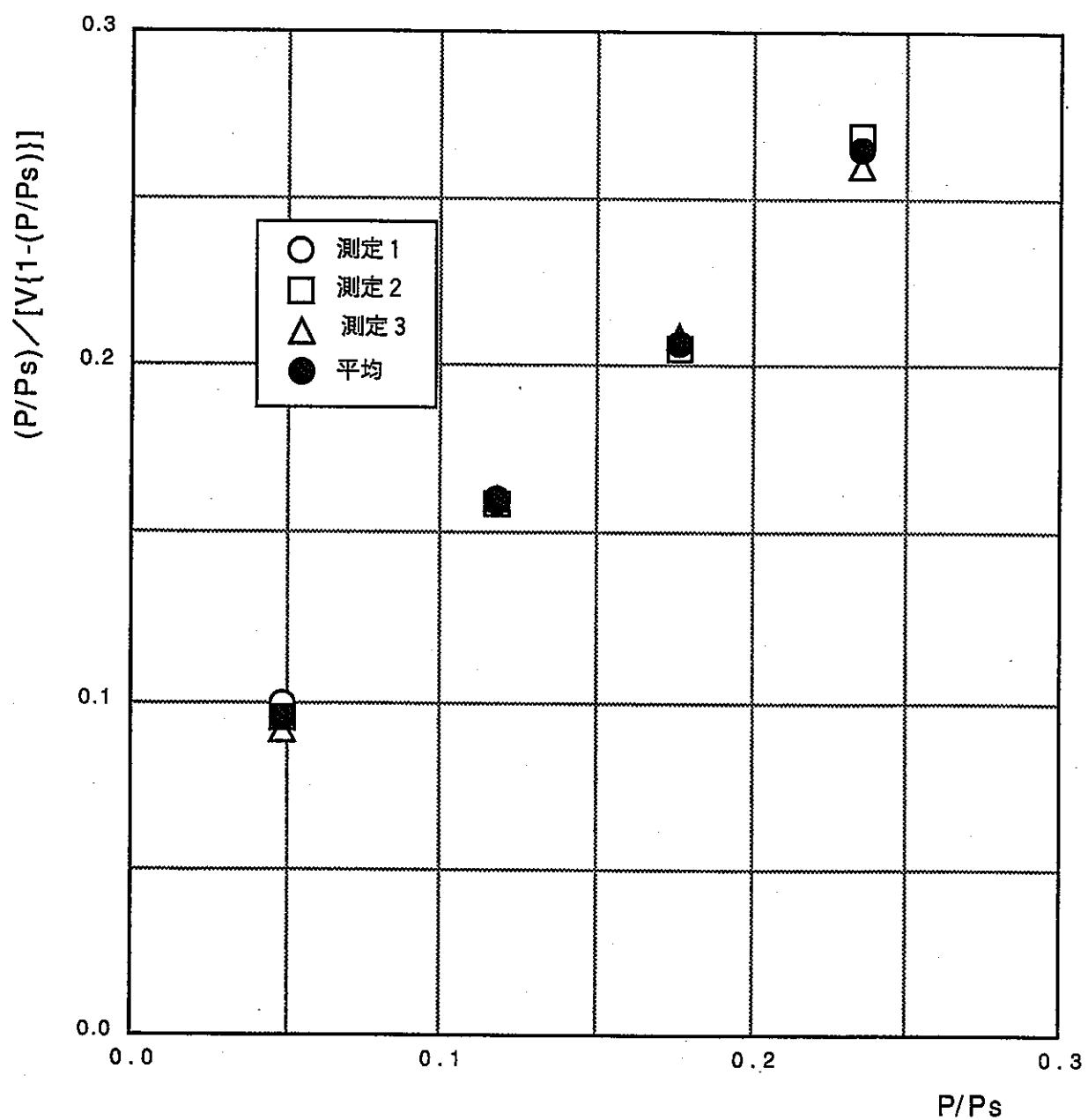


図18 M-2のBET多点法プロット図

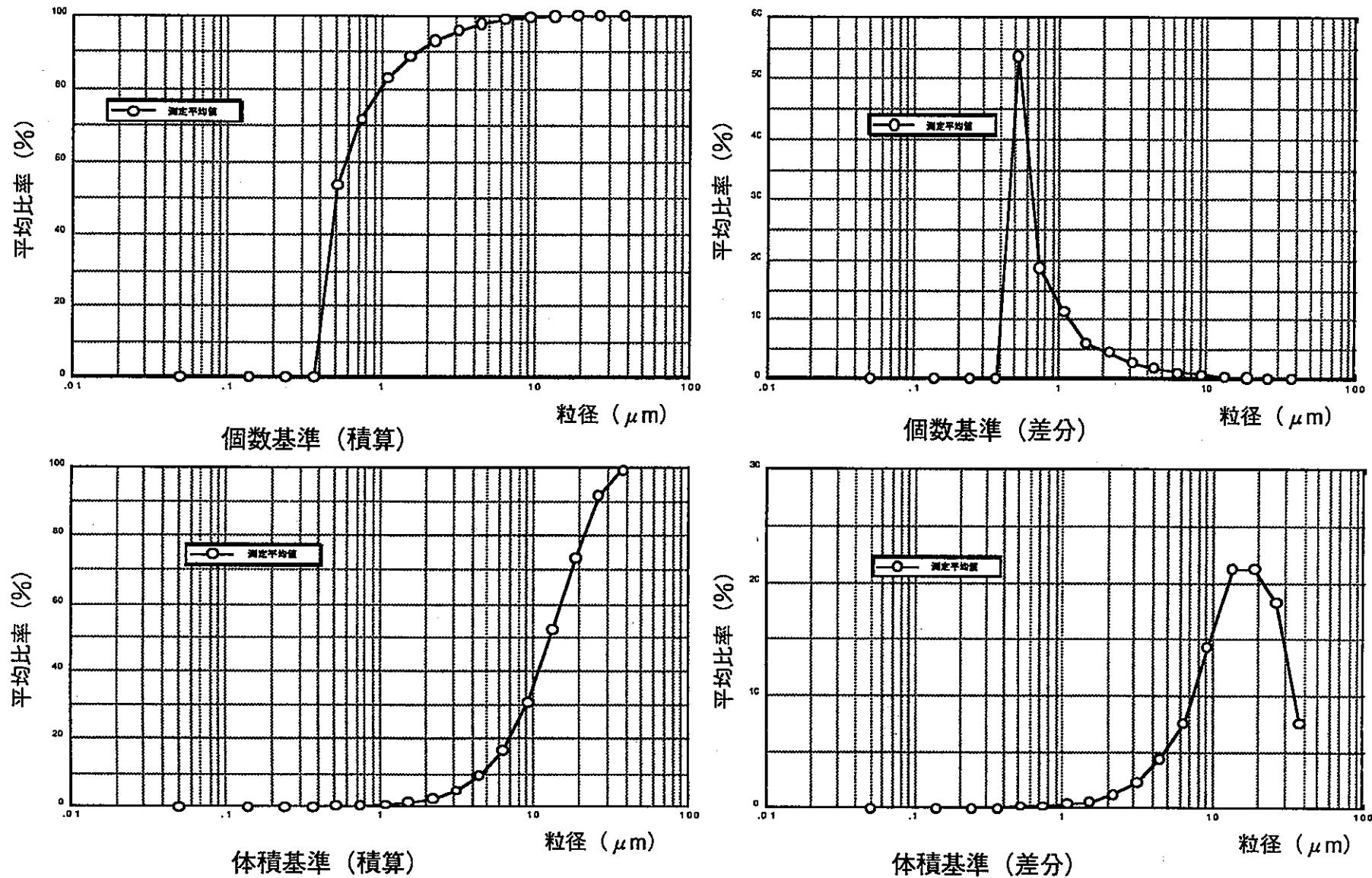


図 19-a

U-1の粒度分布図 (照射時間; 0S)

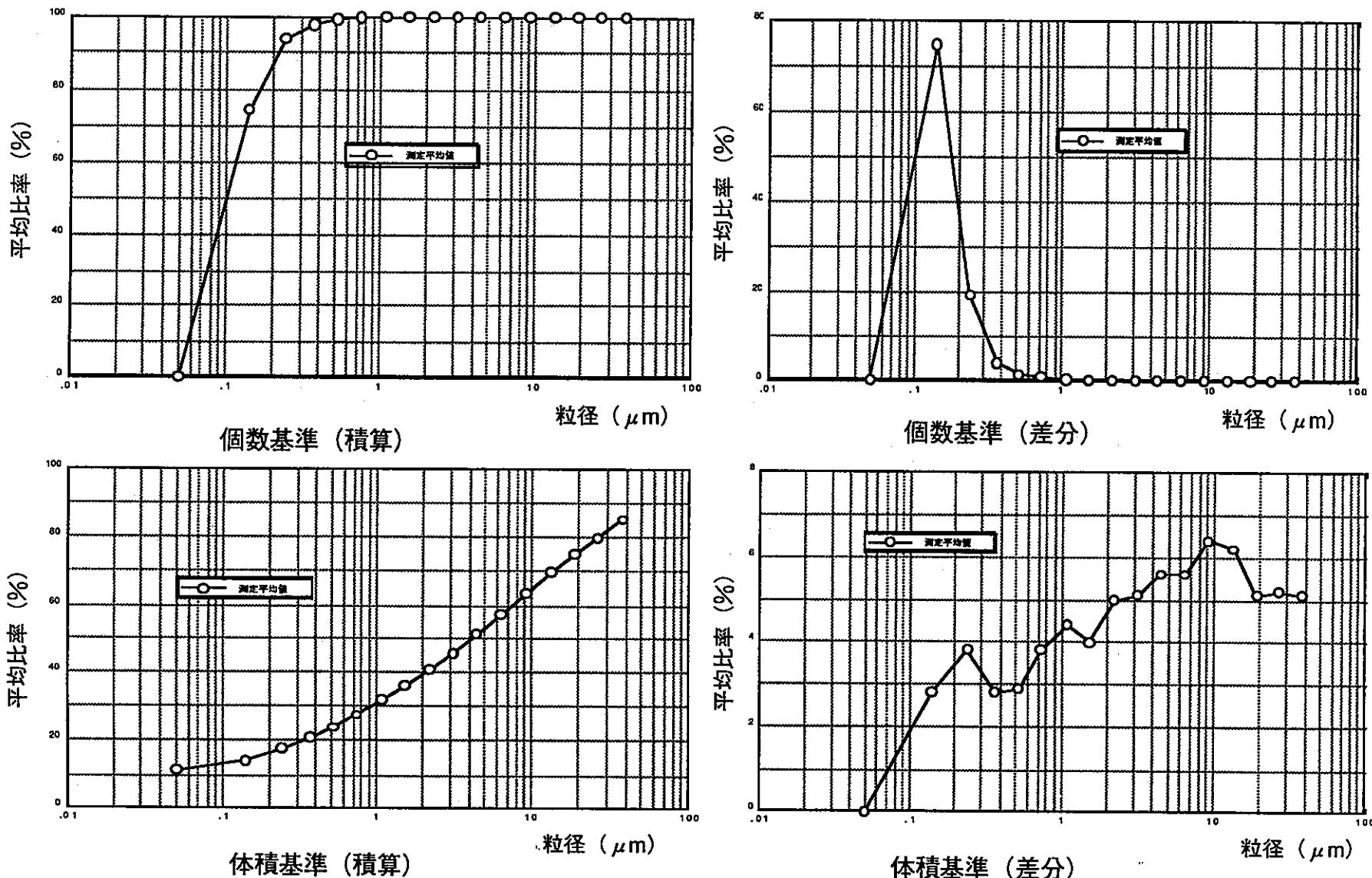


図 19-b

U-1の粒度分布図 (照射時間: 180S)

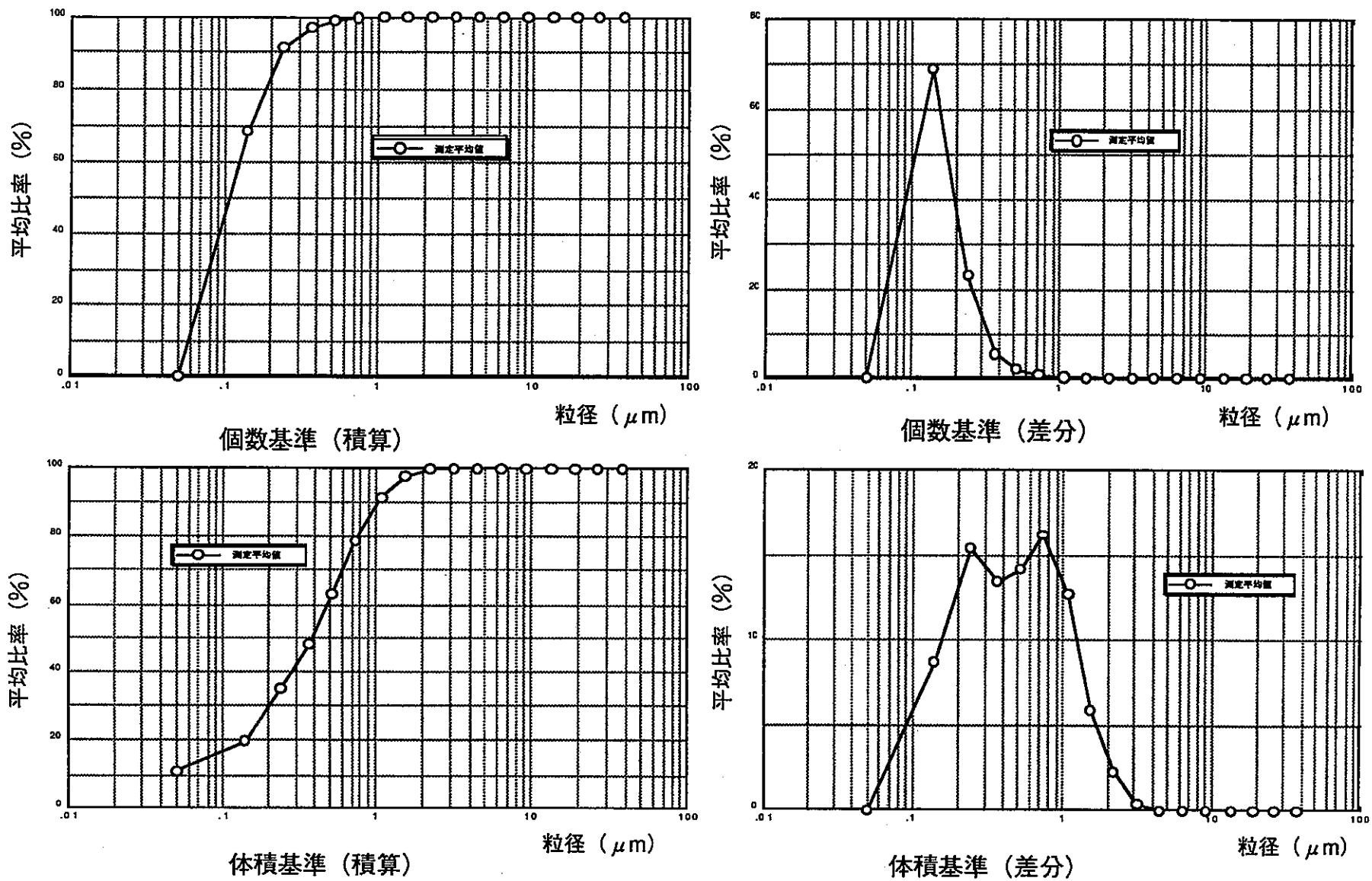
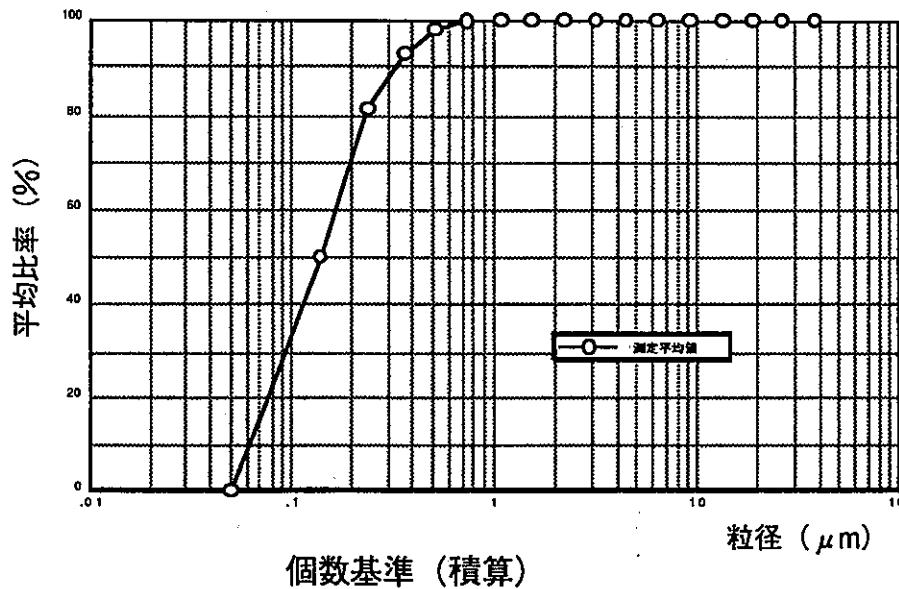
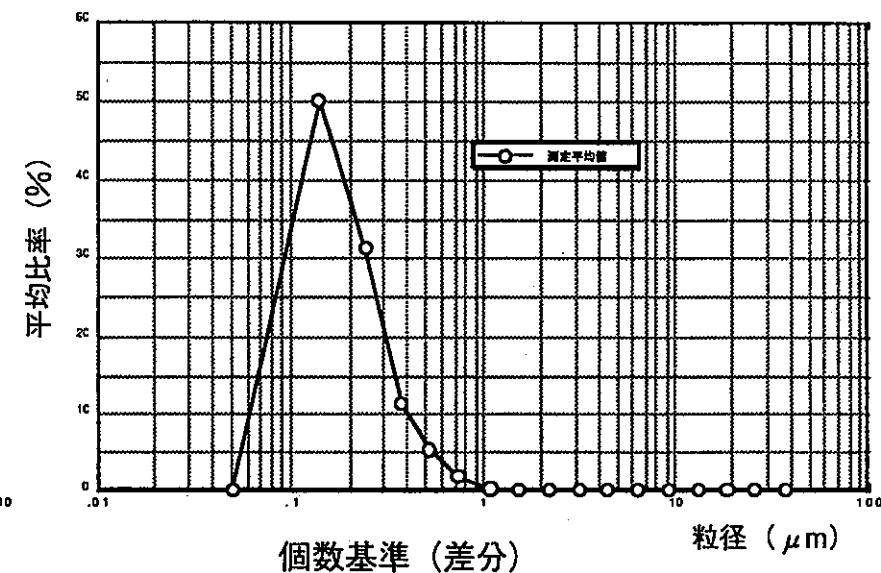


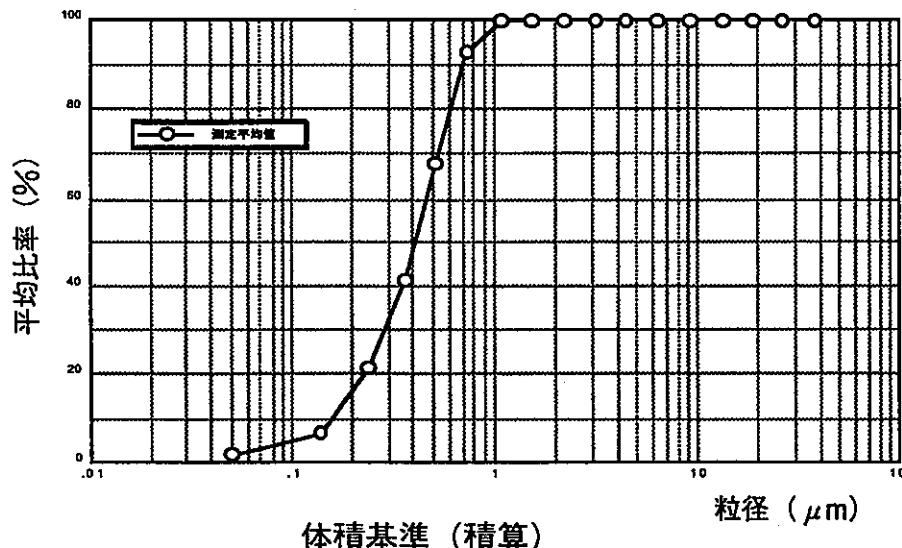
図 19-c U-1の粒度分布図 (照射時間; 5M)



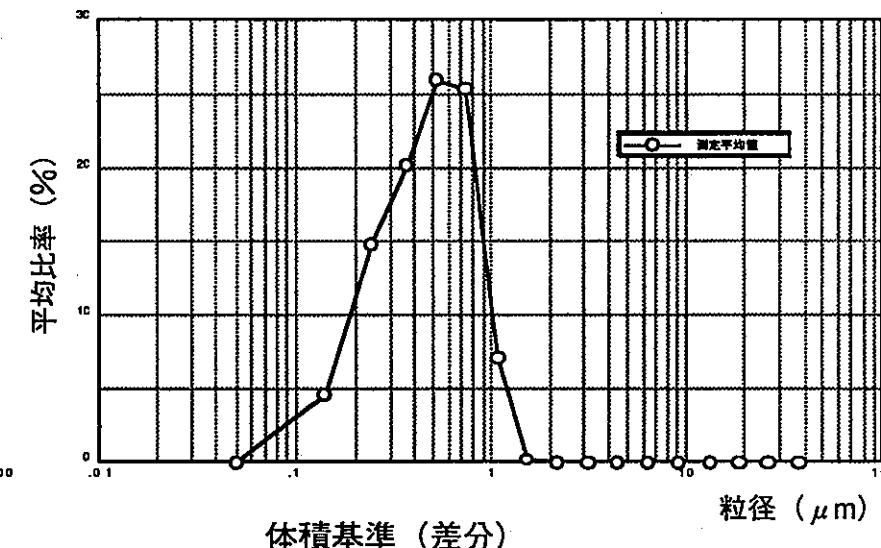
個数基準（積算）



個数基準（差分）



体積基準（積算）



体積基準（差分）

図 19-d

U-1の粒度分布図（照射時間；10M）

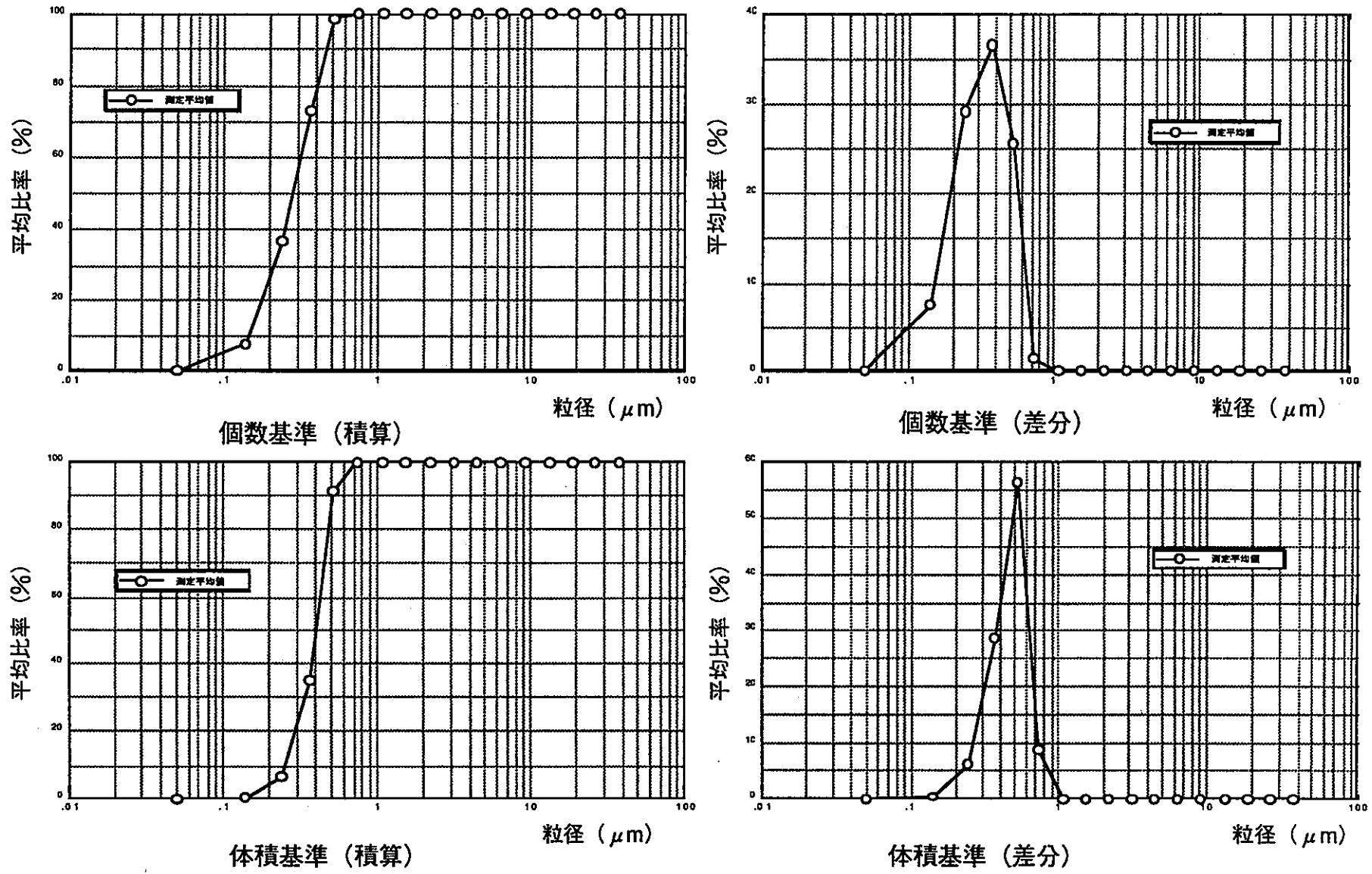


図 19-e

U-1の粒度分布図 (照射時間; 20M)

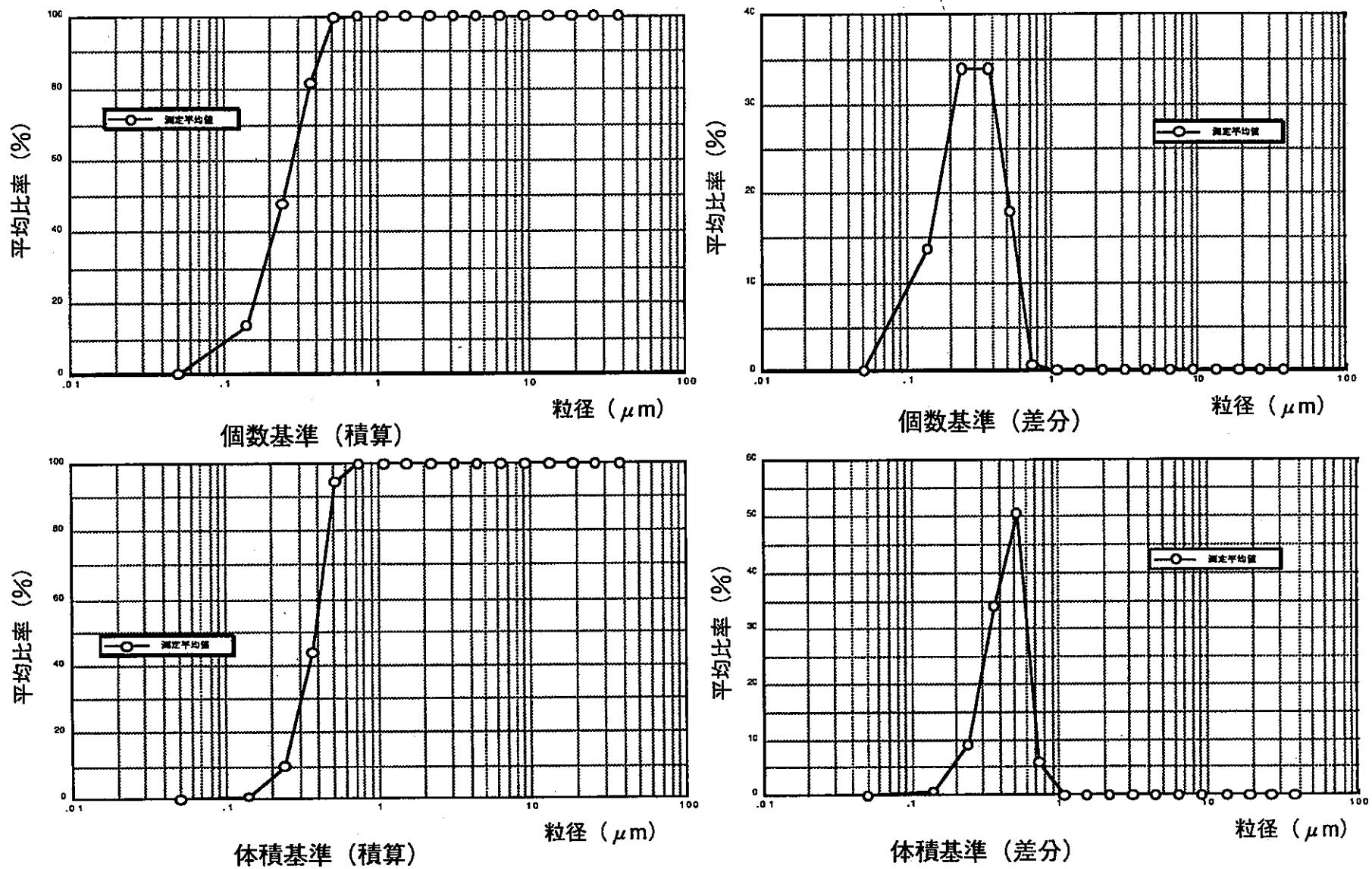


図 19-f

U-1の粒度分布図 (照射時間; 40M)

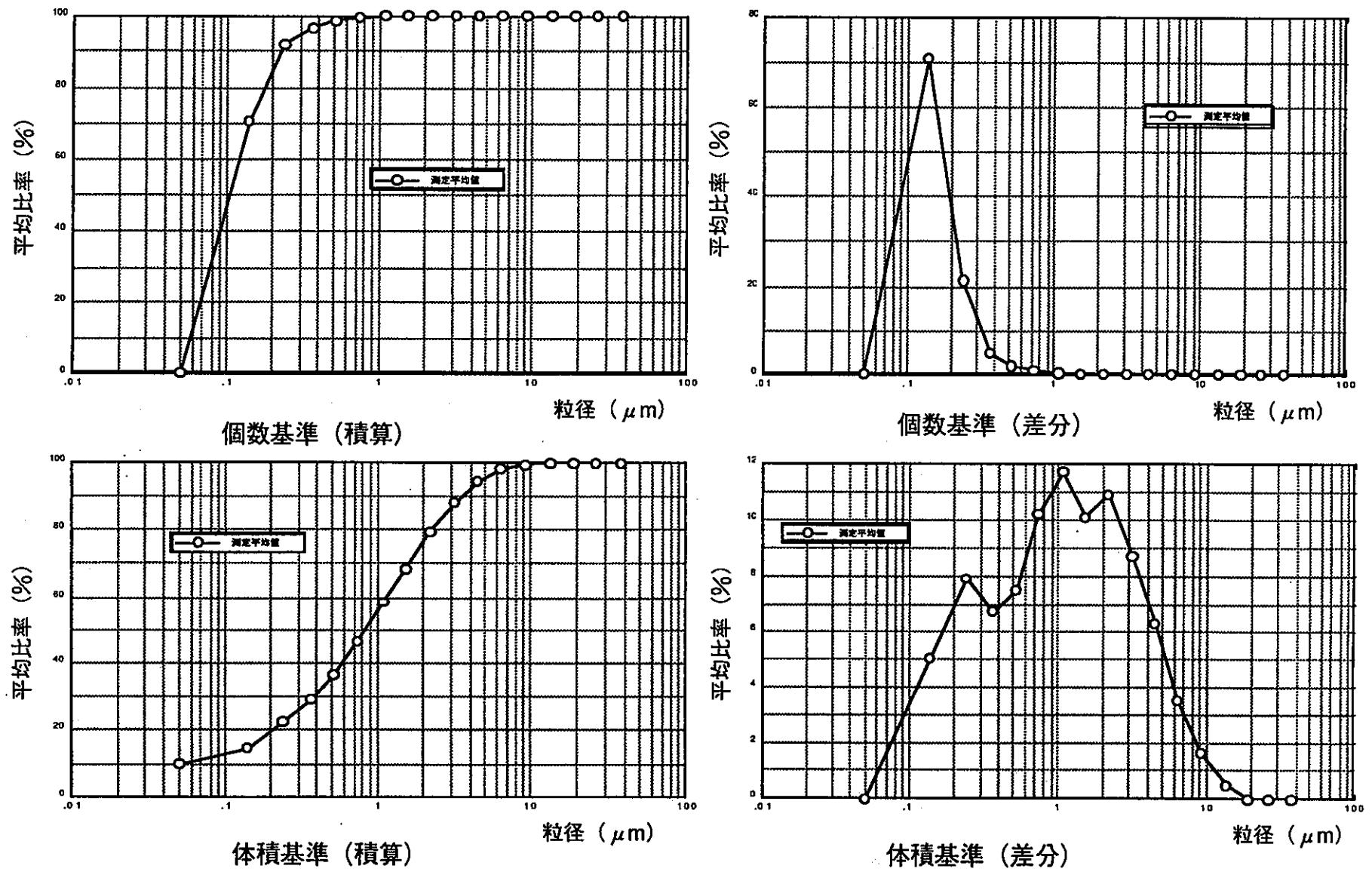


図 20-a U-2の粒度分布図 (照射時間; 0S)

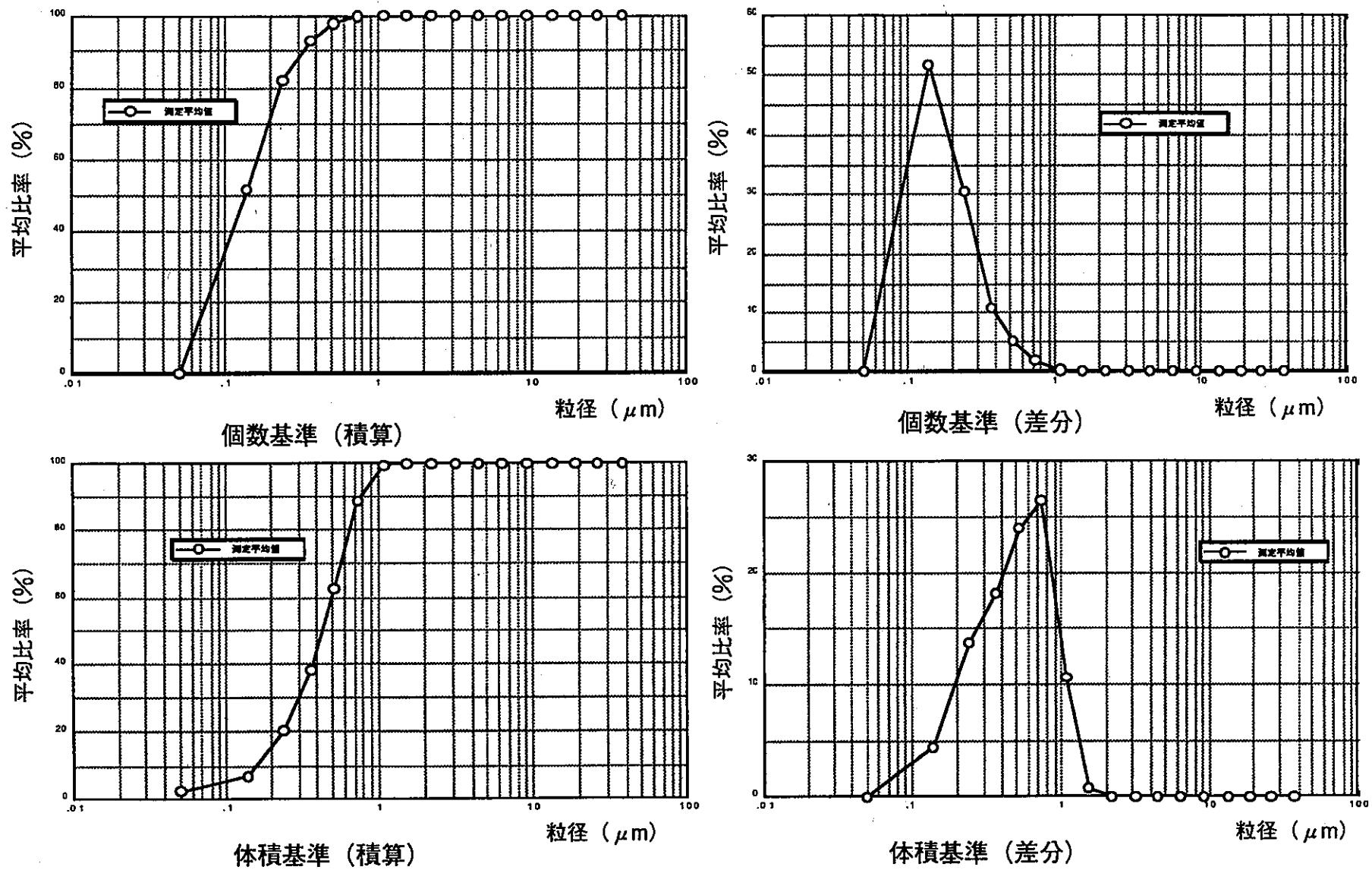


図 20-b

U-2の粒度分布図 (照射時間; 180S)

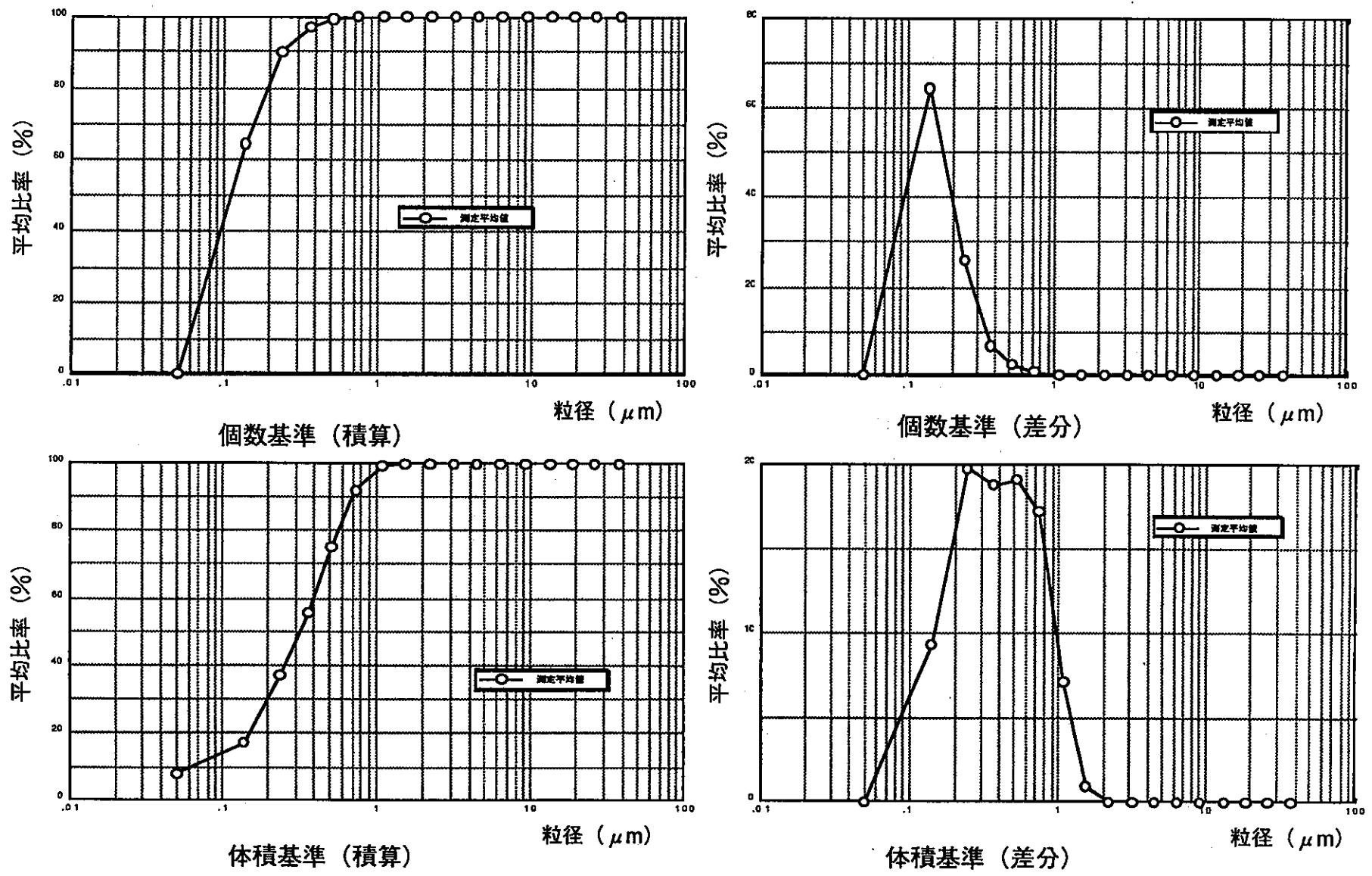


図 20-c U-20の粒度分布図 (照射時間; 10M)

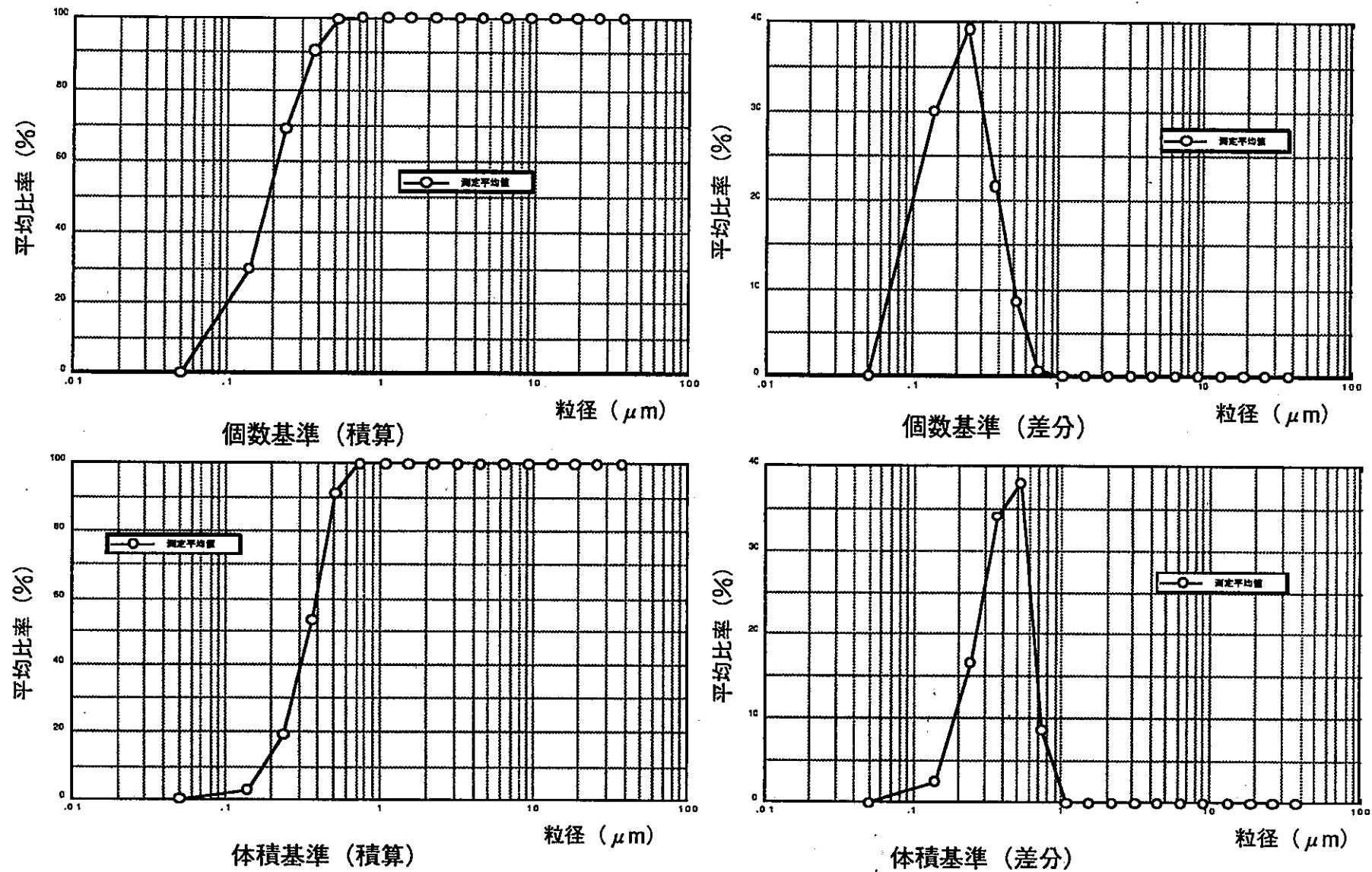


図 20-d U-2の粒度分布図 (照射時間; 40M)

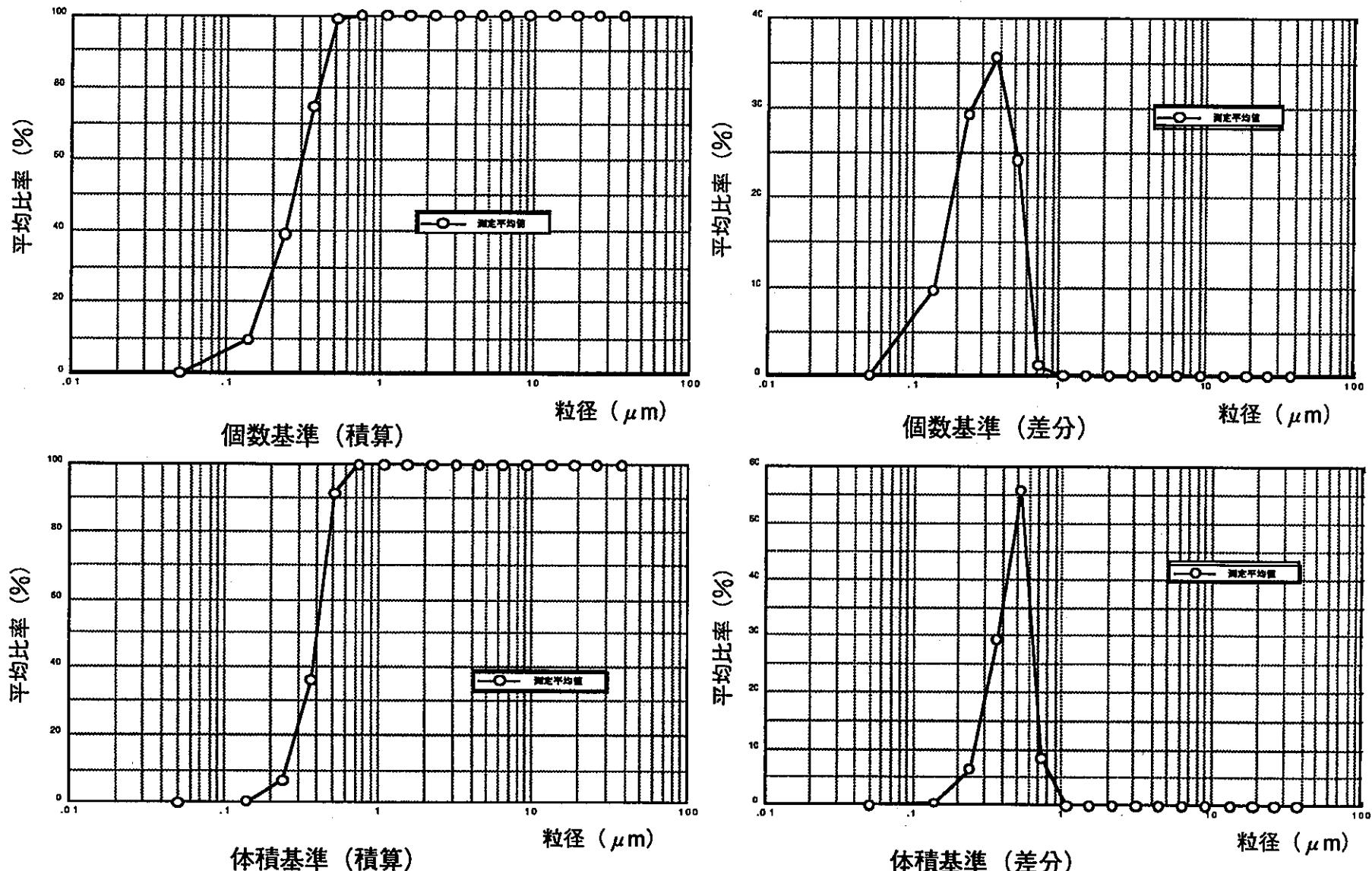


図 20-e

U-2の粒度分布図 (照射時間; 60M)

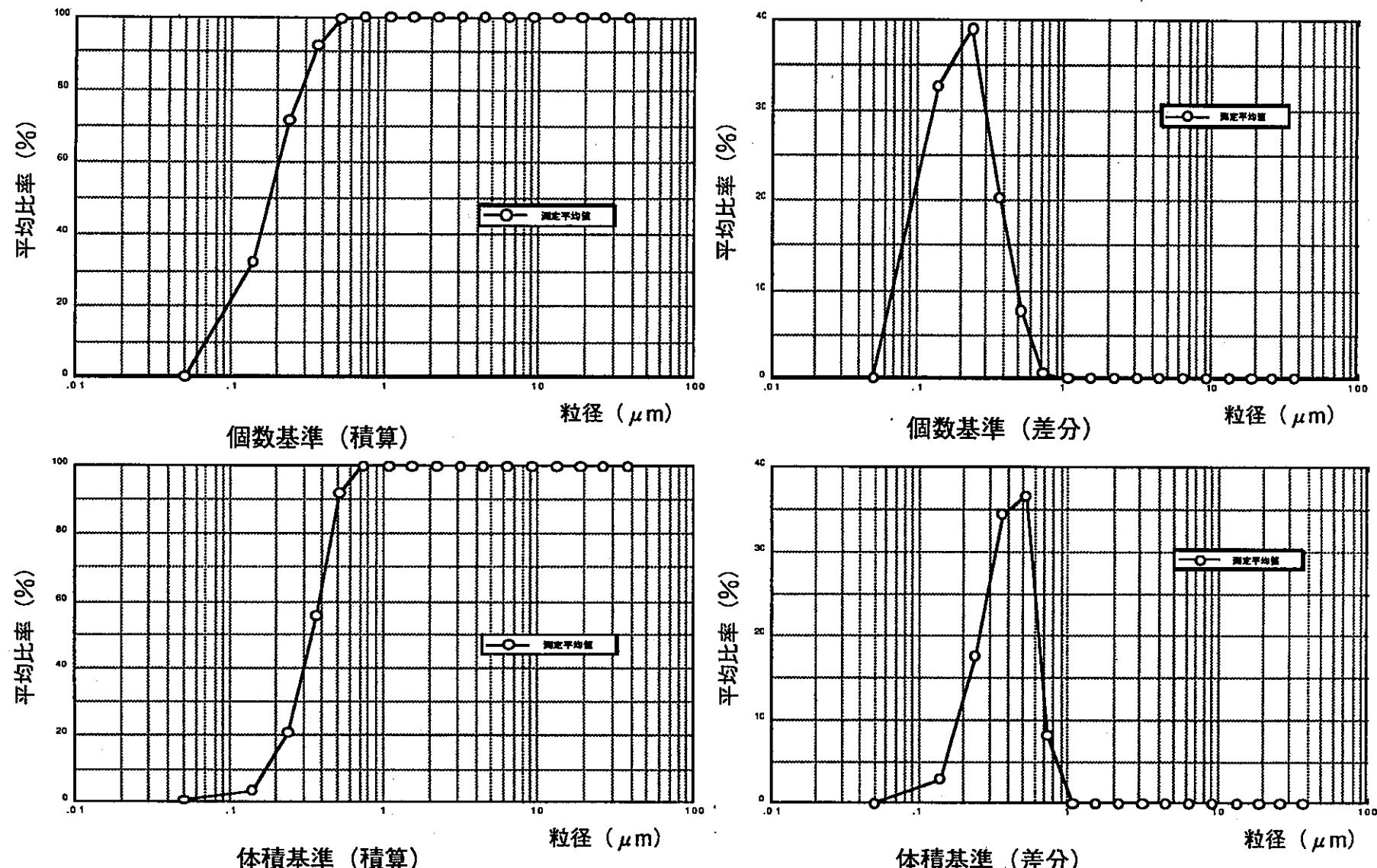


図 20-f

U-2の粒度分布図 (照射時間; 90M)

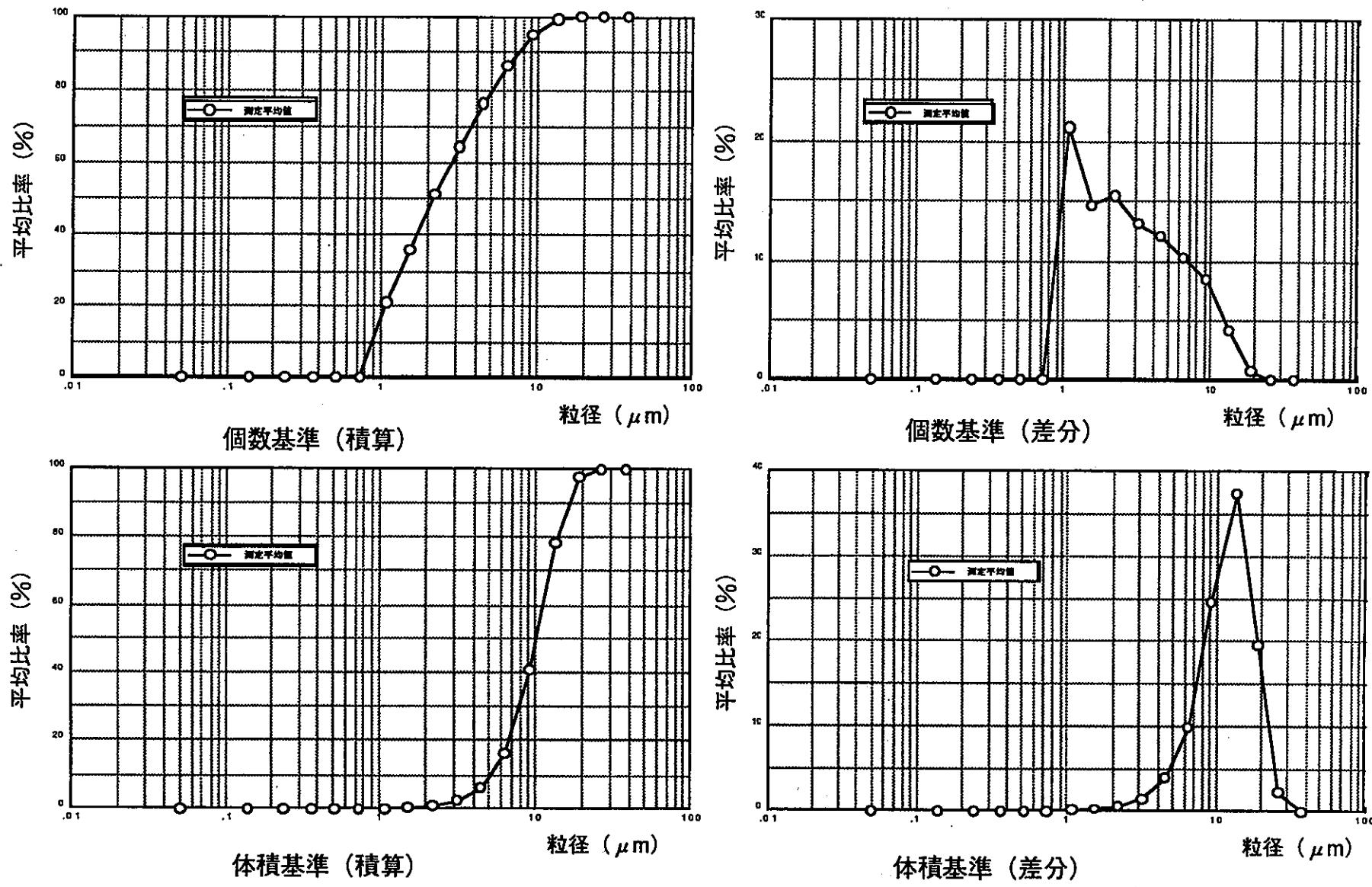


図 21-a U-3の粒度分布図 (照射時間; 0S)

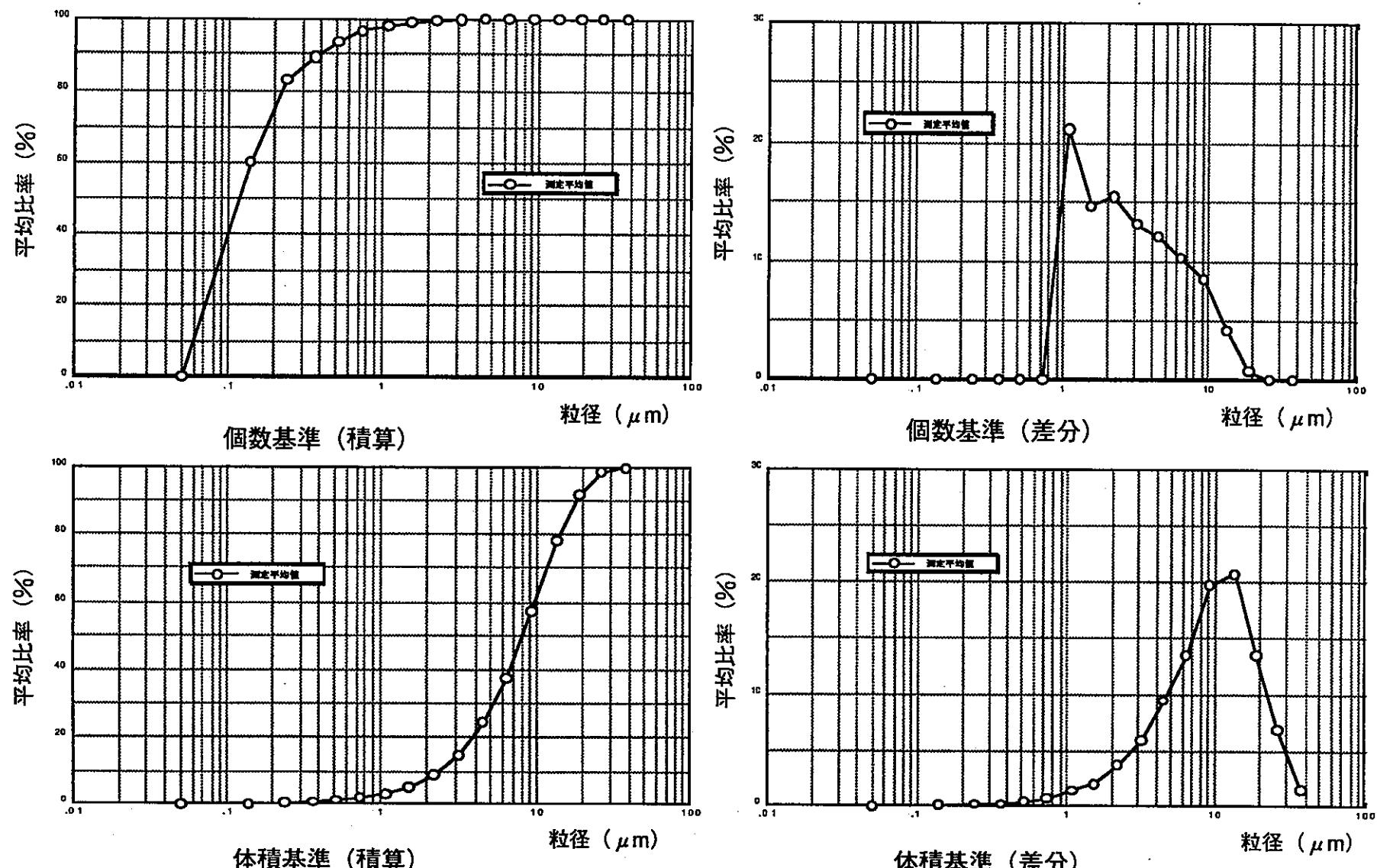


図 21-b

U-3の粒度分布図 (照射時間; 180S)

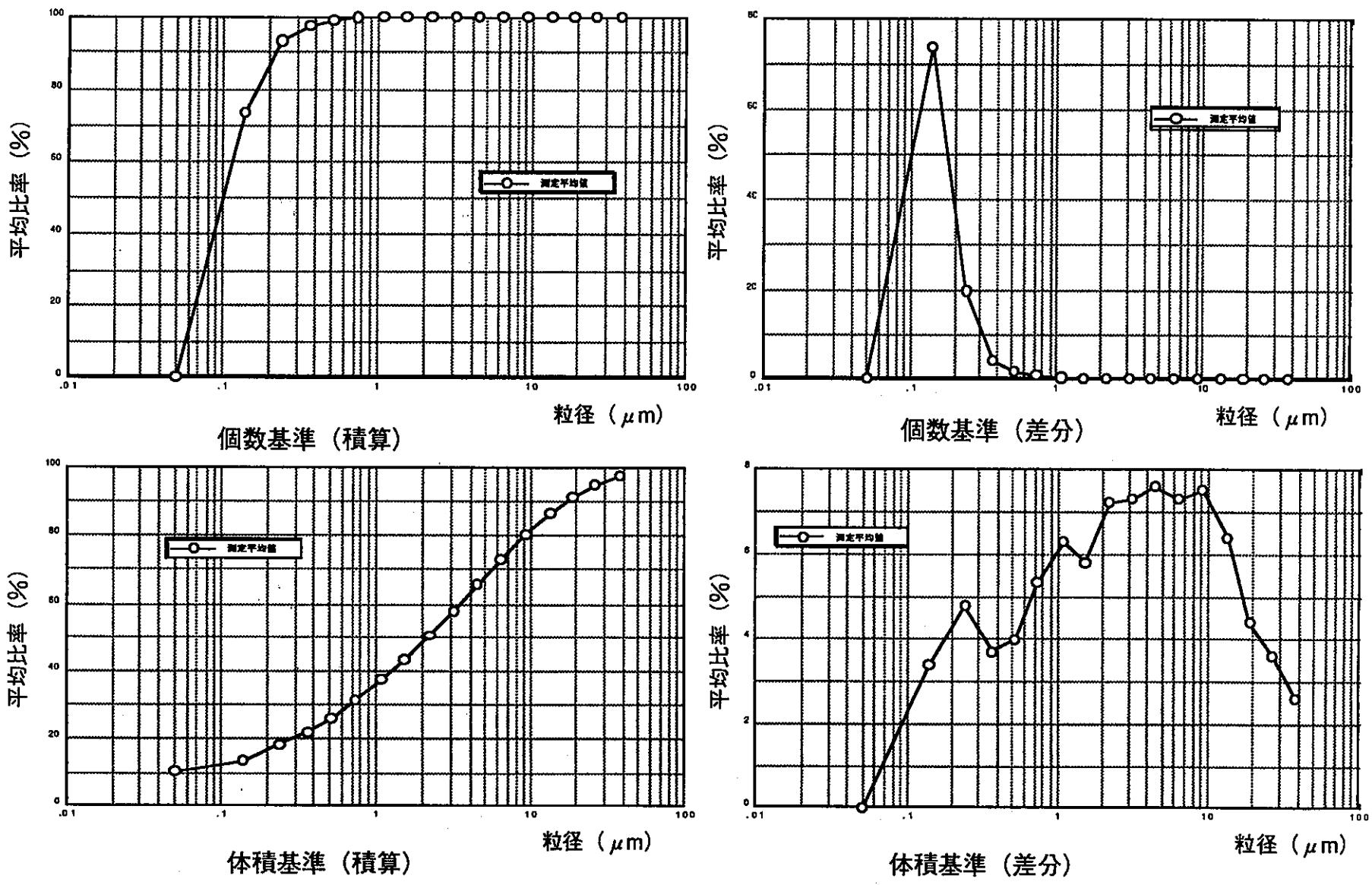


図 21-c

U-3の粒度分布図 (照射時間; 5M)

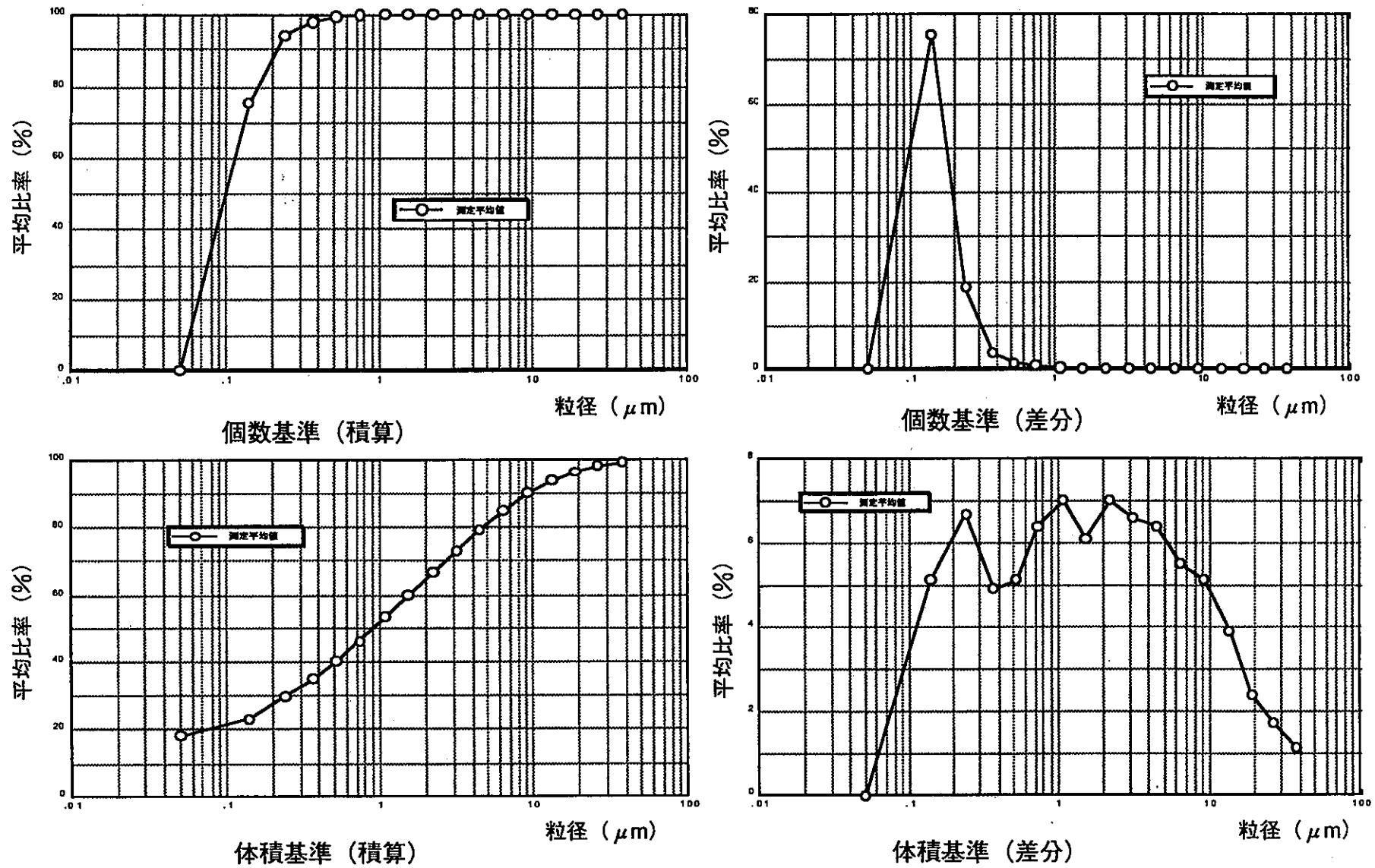


図 21-d U-3の粒度分布図 (照射時間; 10M)

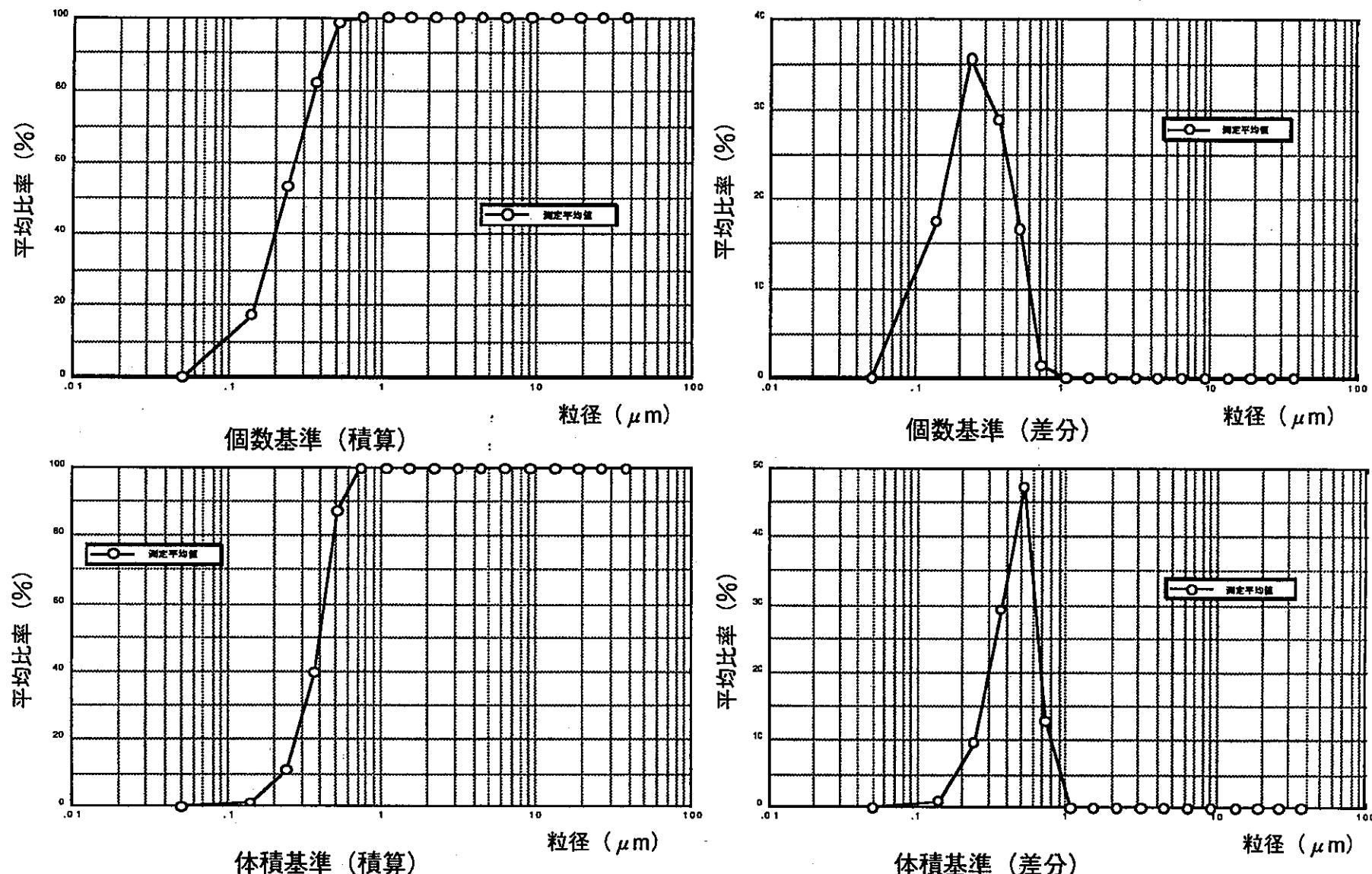


図 21-e

U-3の粒度分布図 (照射時間; 20M)

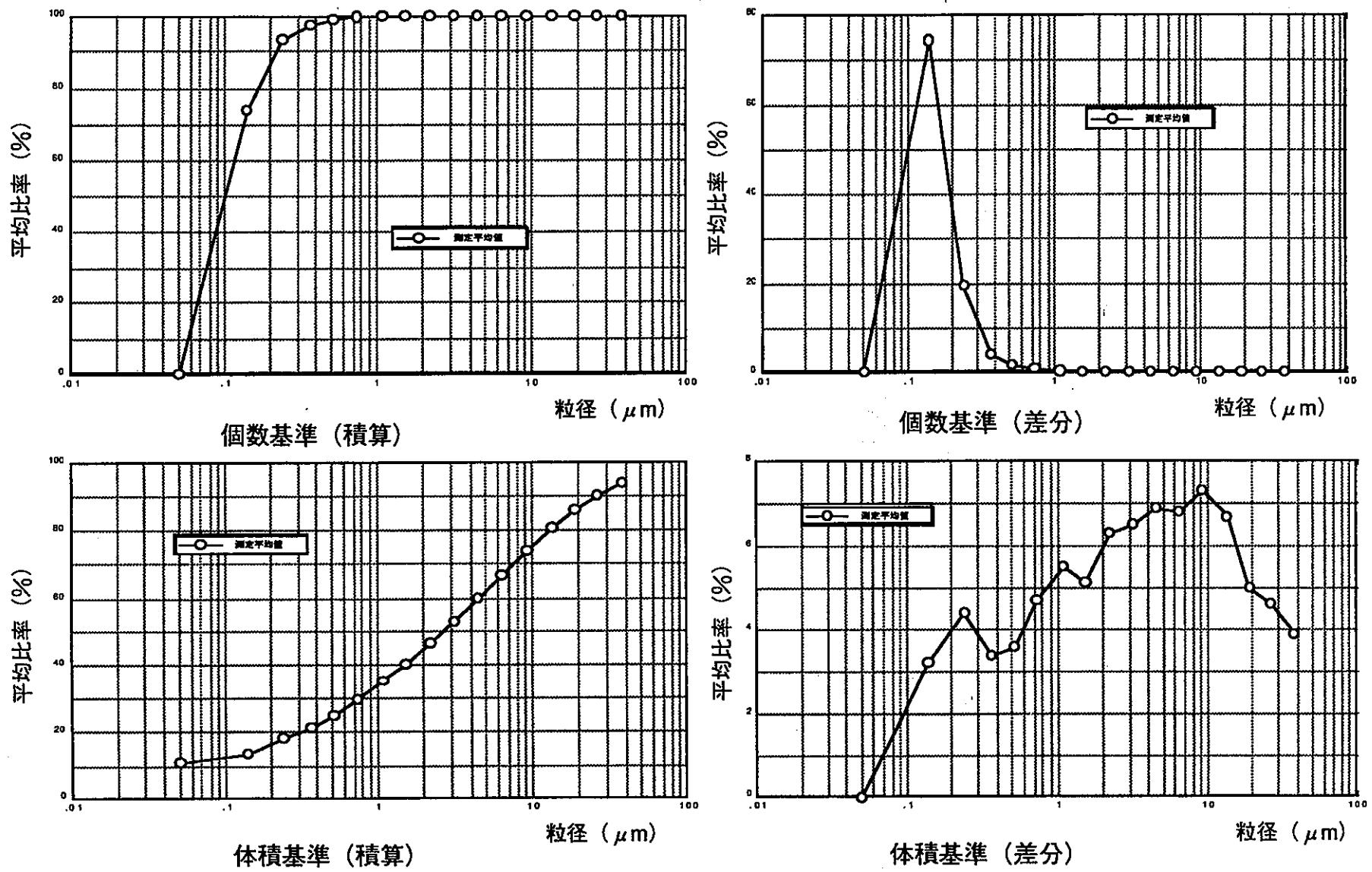


図 22-a

U-4の粒度分布図 (照射時間; 0S)

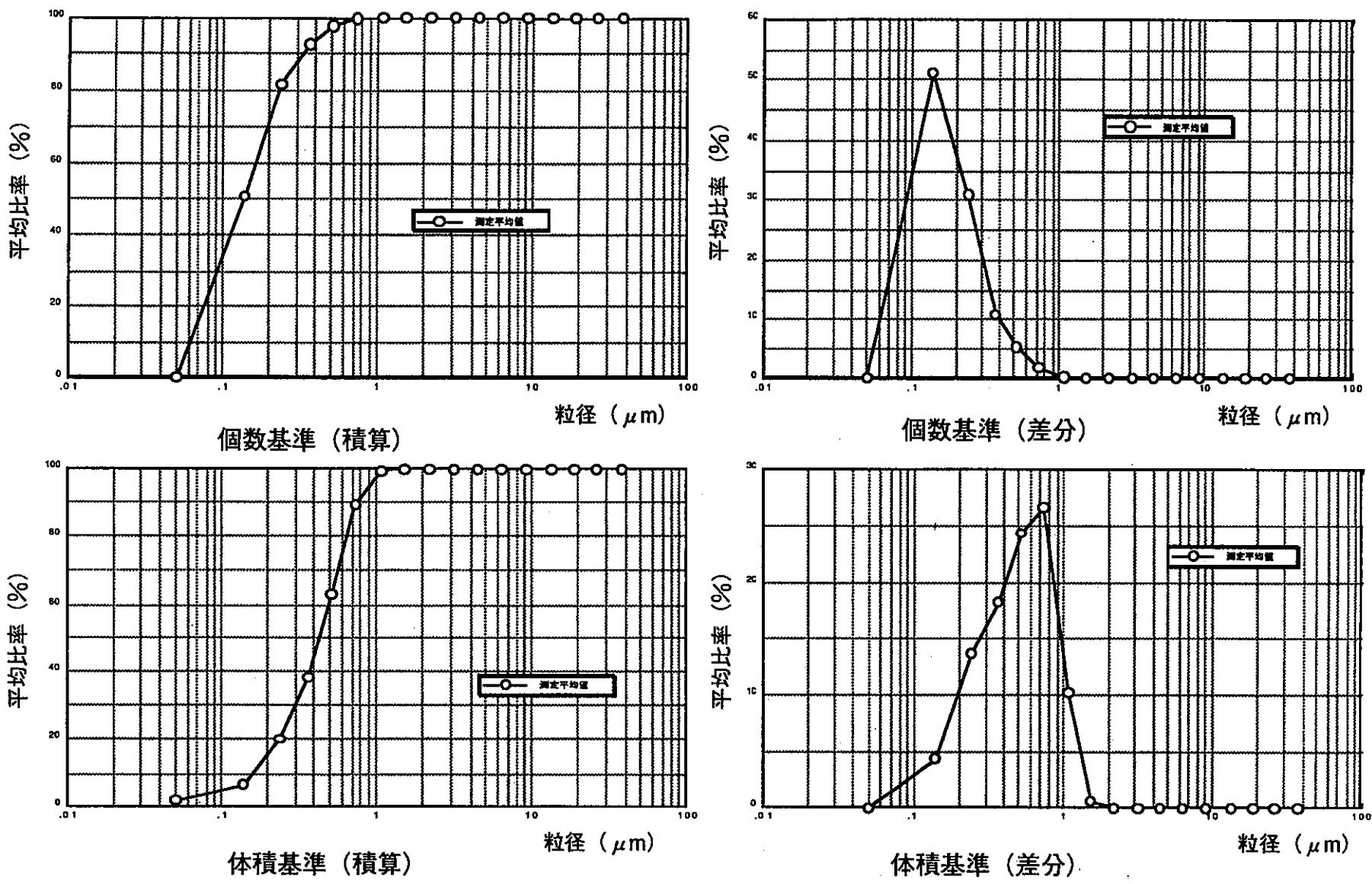


図 22-b

U-4の粒度分布図 (照射時間; 180S)

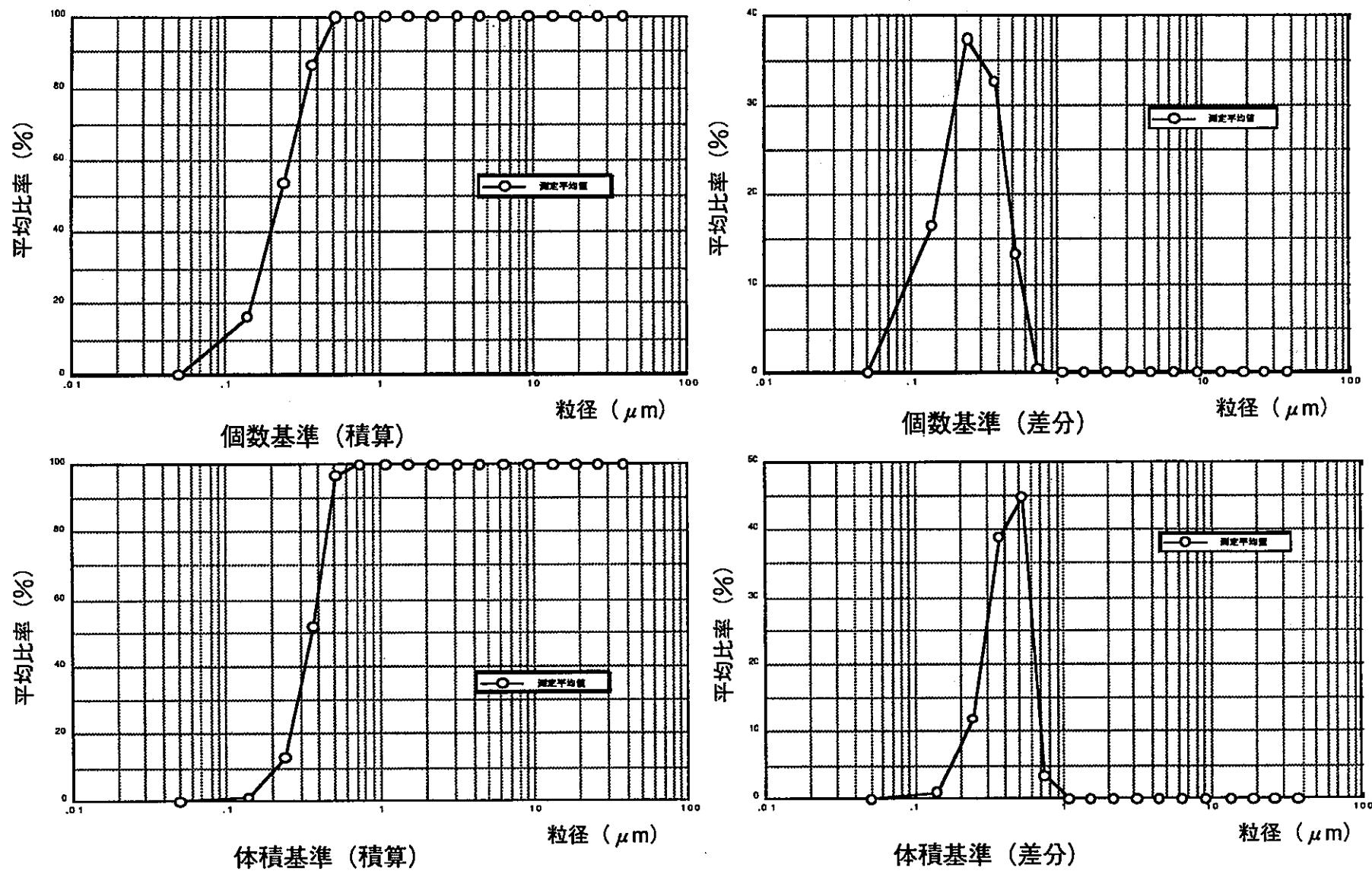


図 22-c

U-4の粒度分布図 (照射時間; 5M)

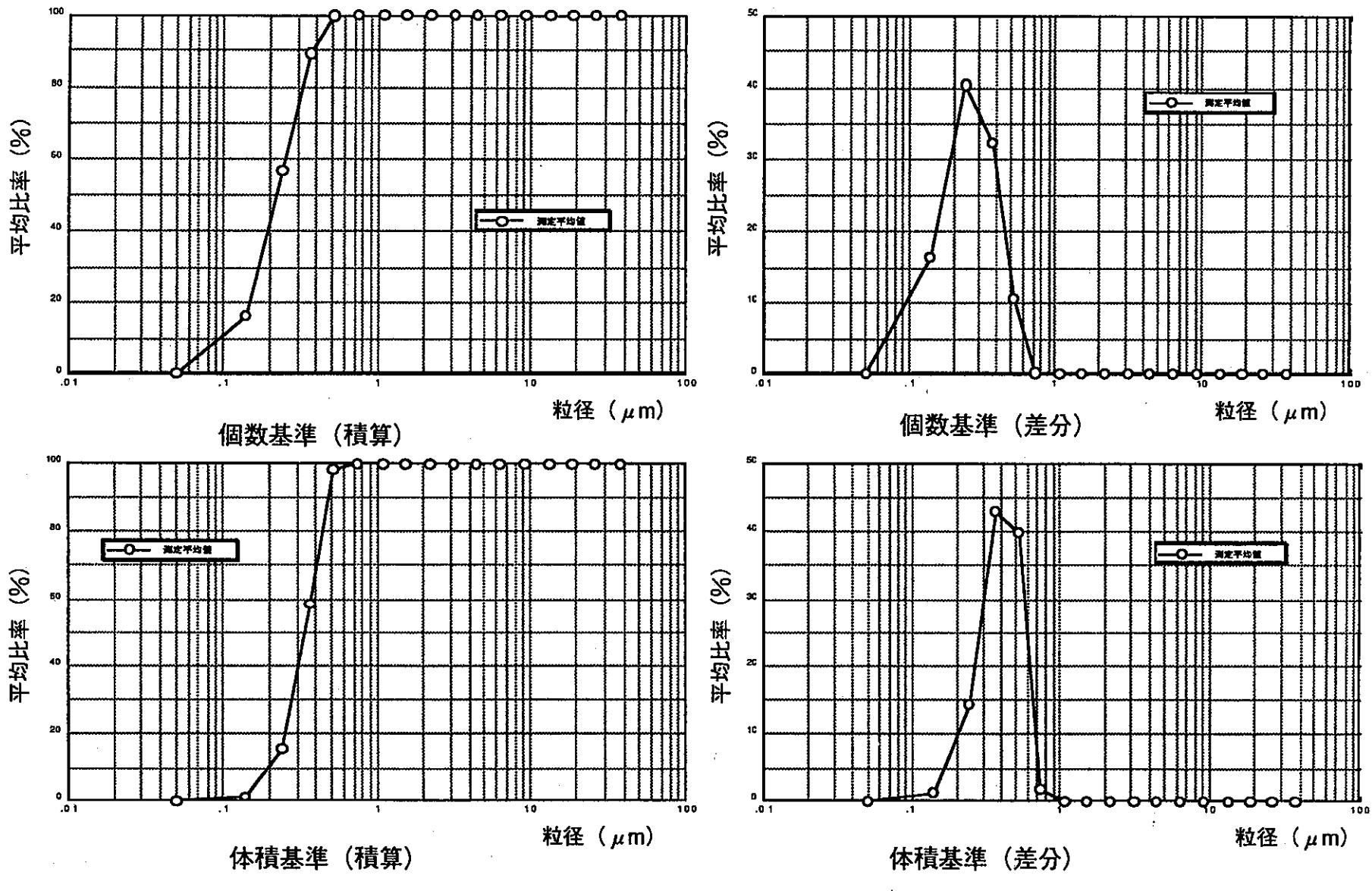


図 22-d

U-4の粒度分布図 (照射時間; 40M)

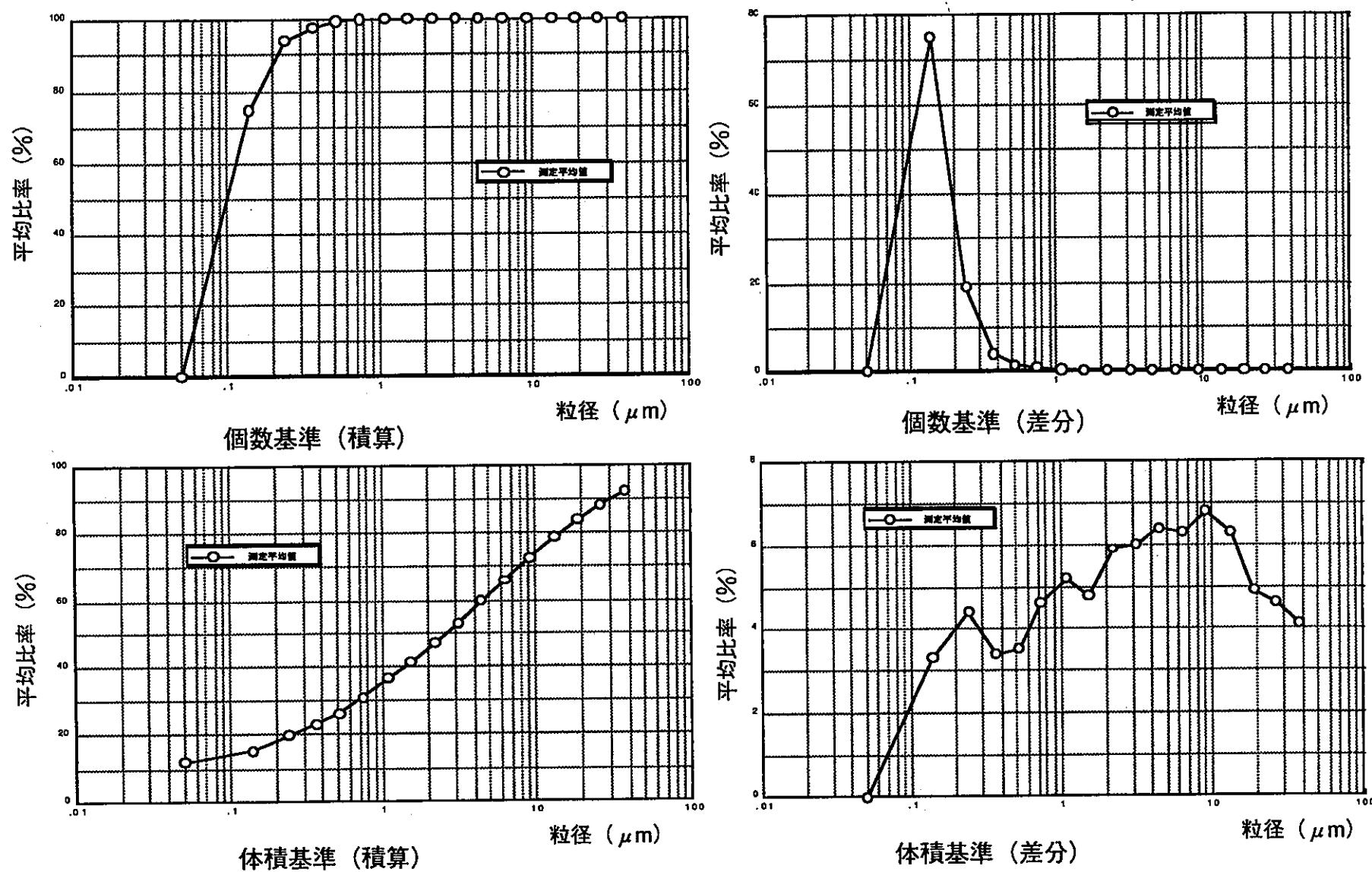


図 23-a

P-1の粒度分布図 (照射時間; 0S)

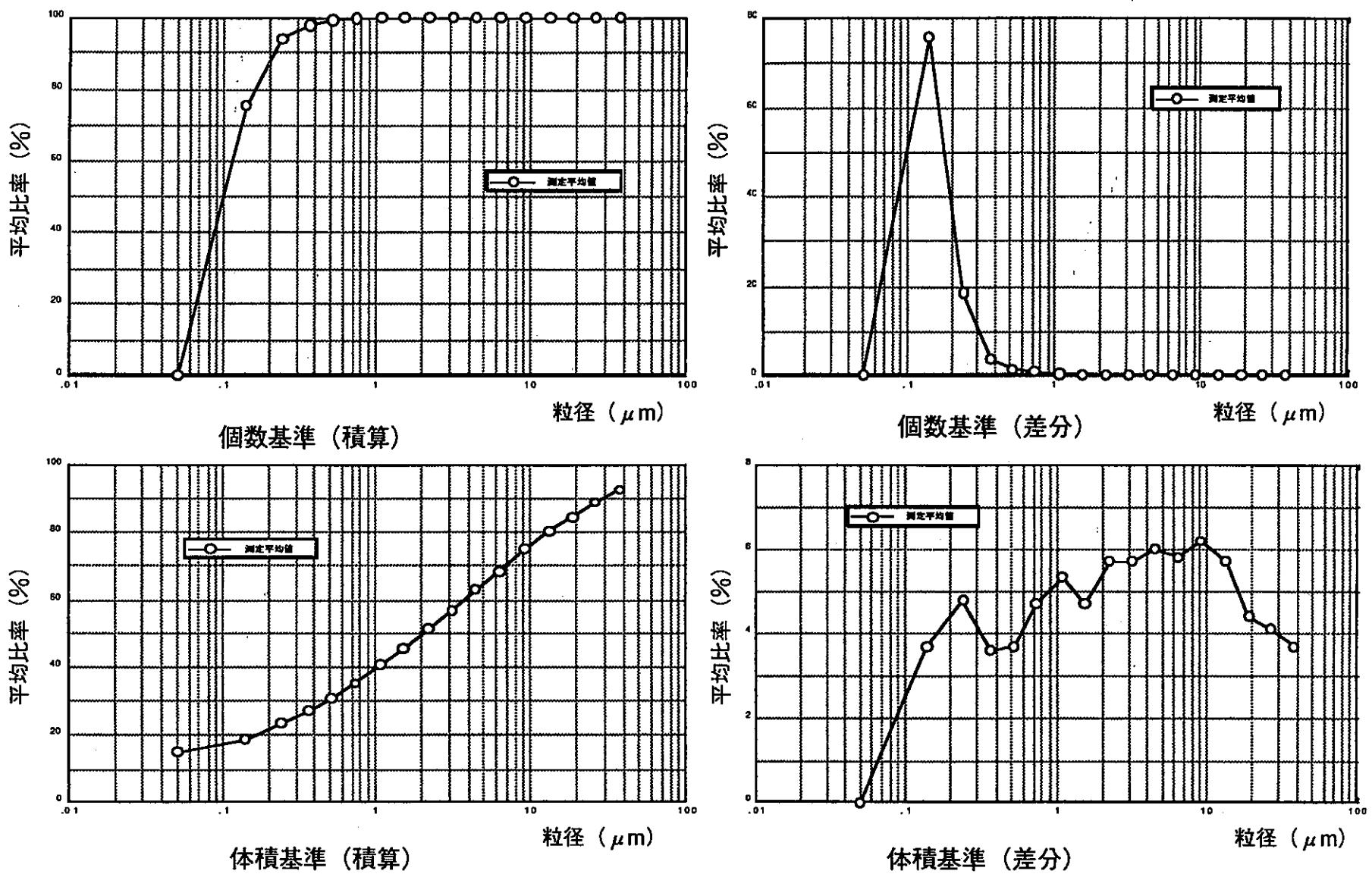


図 23-b P-1の粒度分布図 (照射時間；180S)

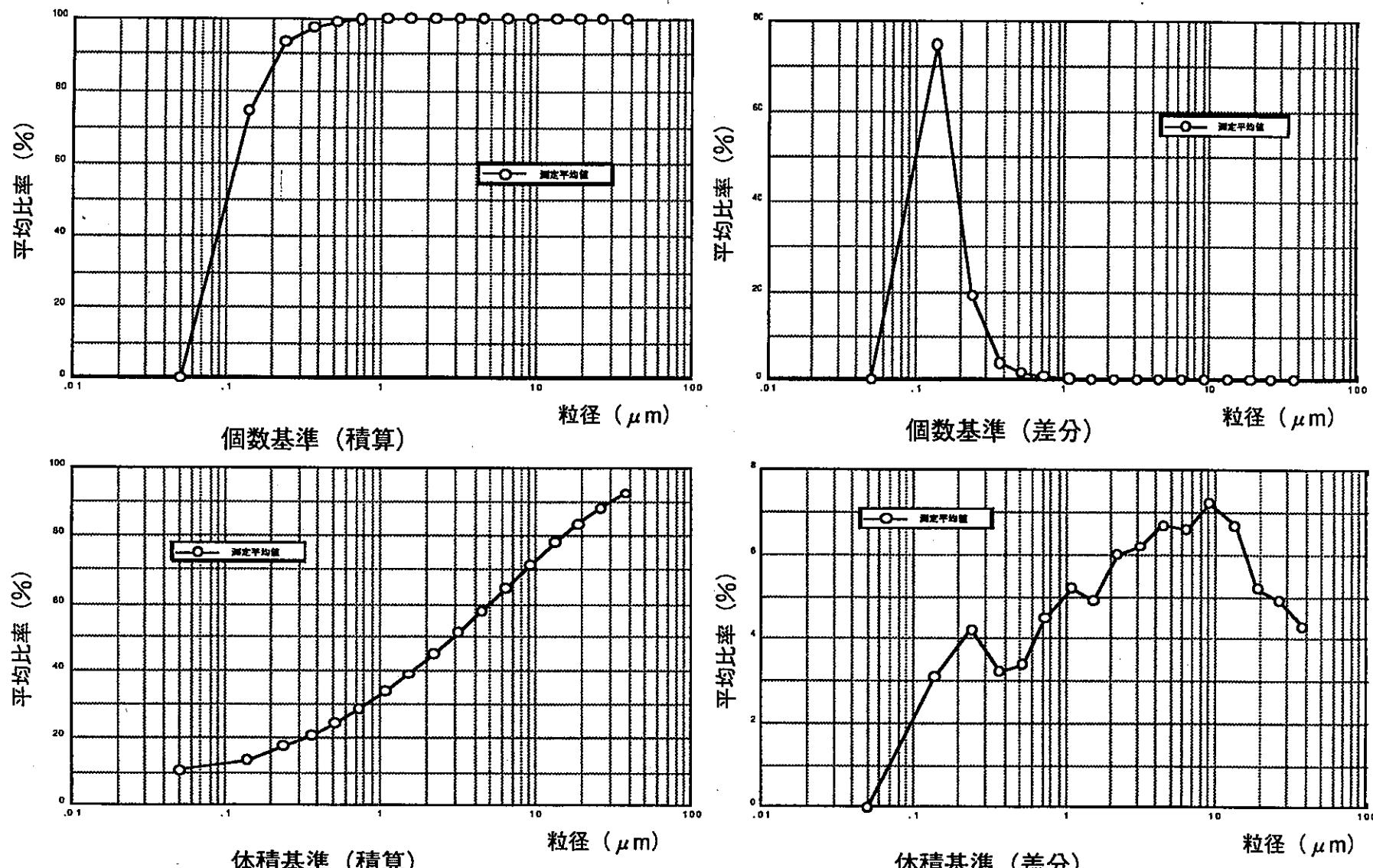


図 23-c

P-1の粒度分布図 (照射時間; 5M)

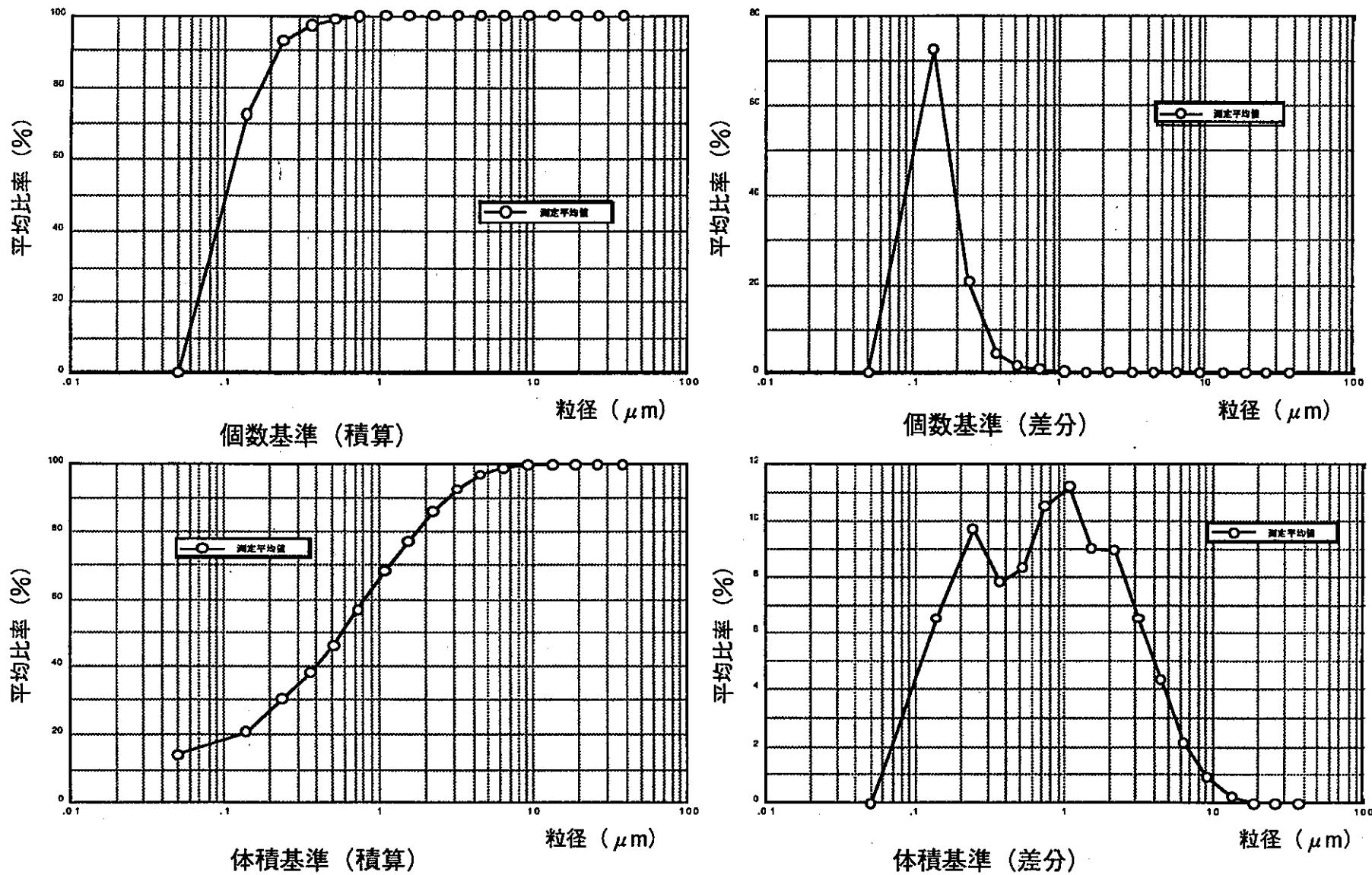


図 23-d

P-1の粒度分布図（照射時間；60M）

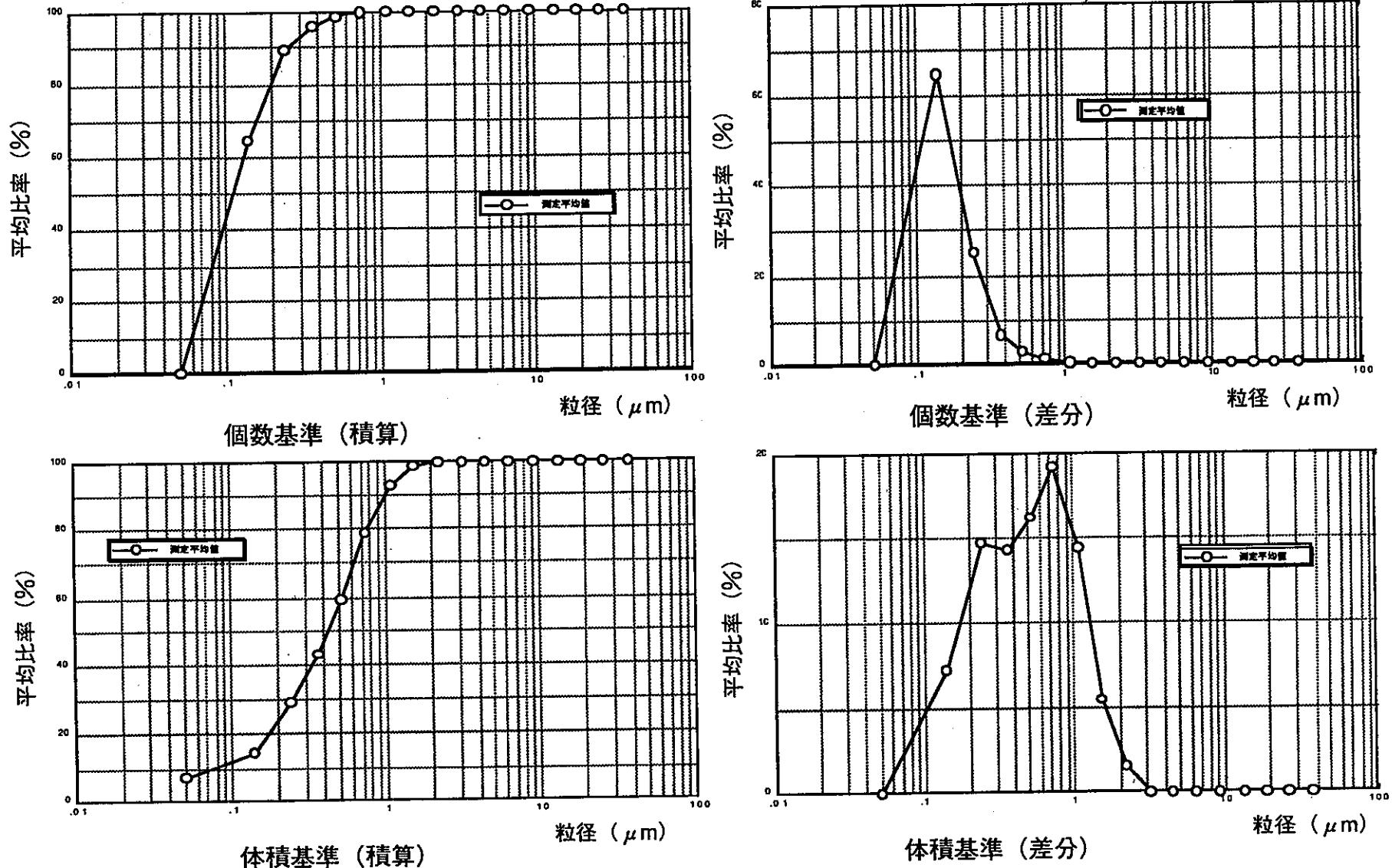


図 23-e

P-1の粒度分布図（照射時間；150M）

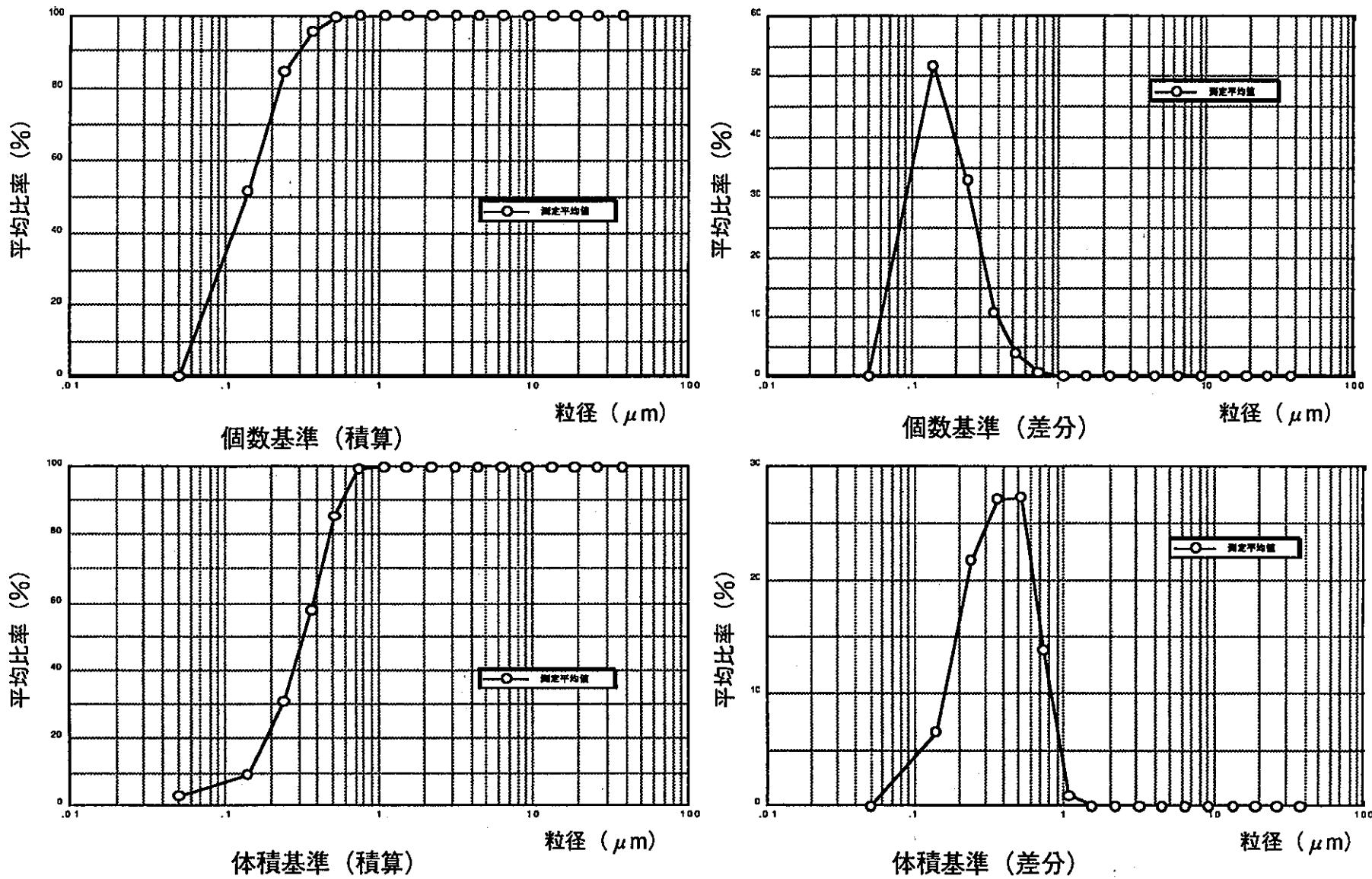


図 24-a P-2の粒度分布図 (照射時間; 0S)

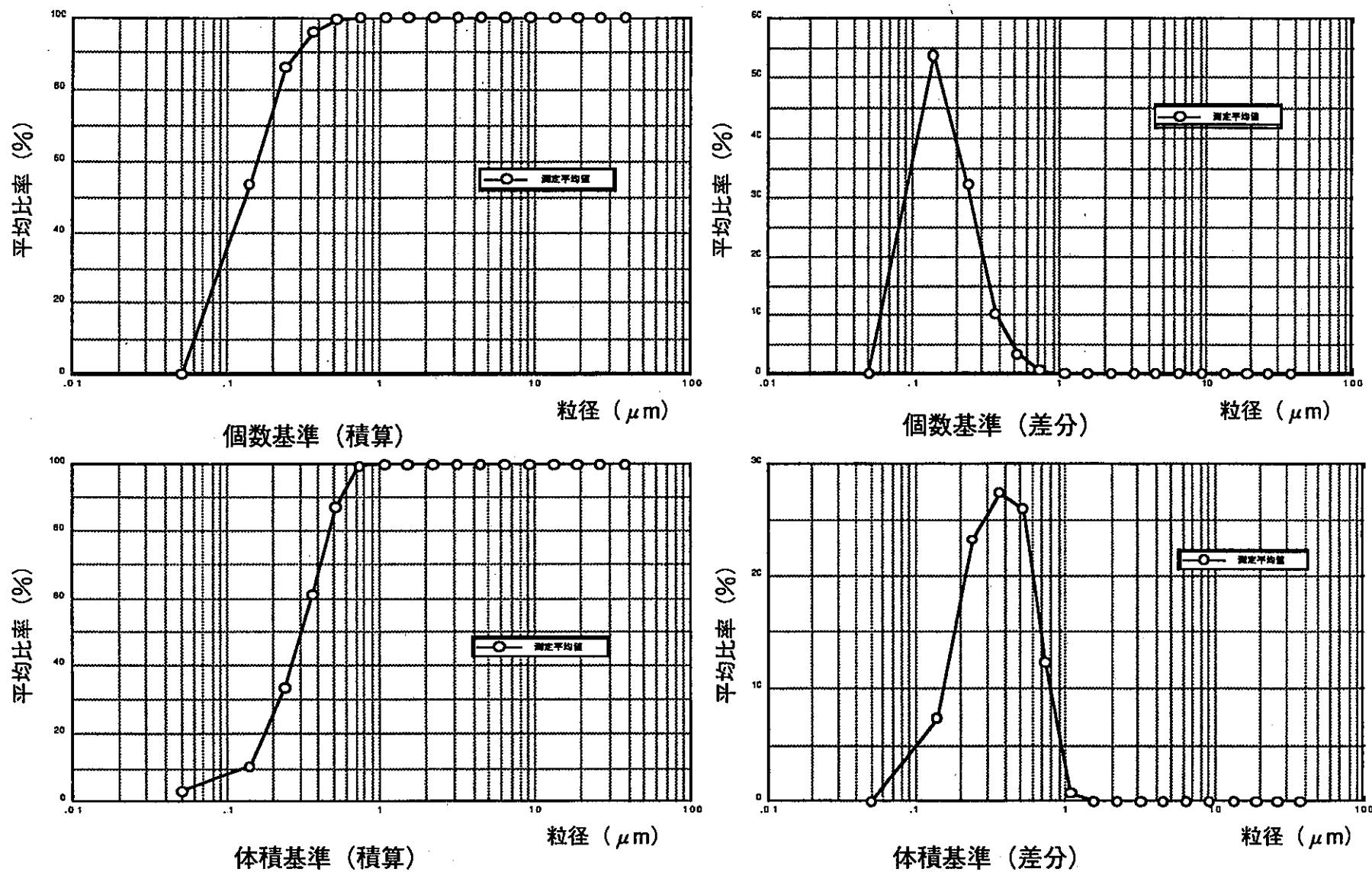


図 24-b

P-2の粒度分布図 (照射時間; 180S)

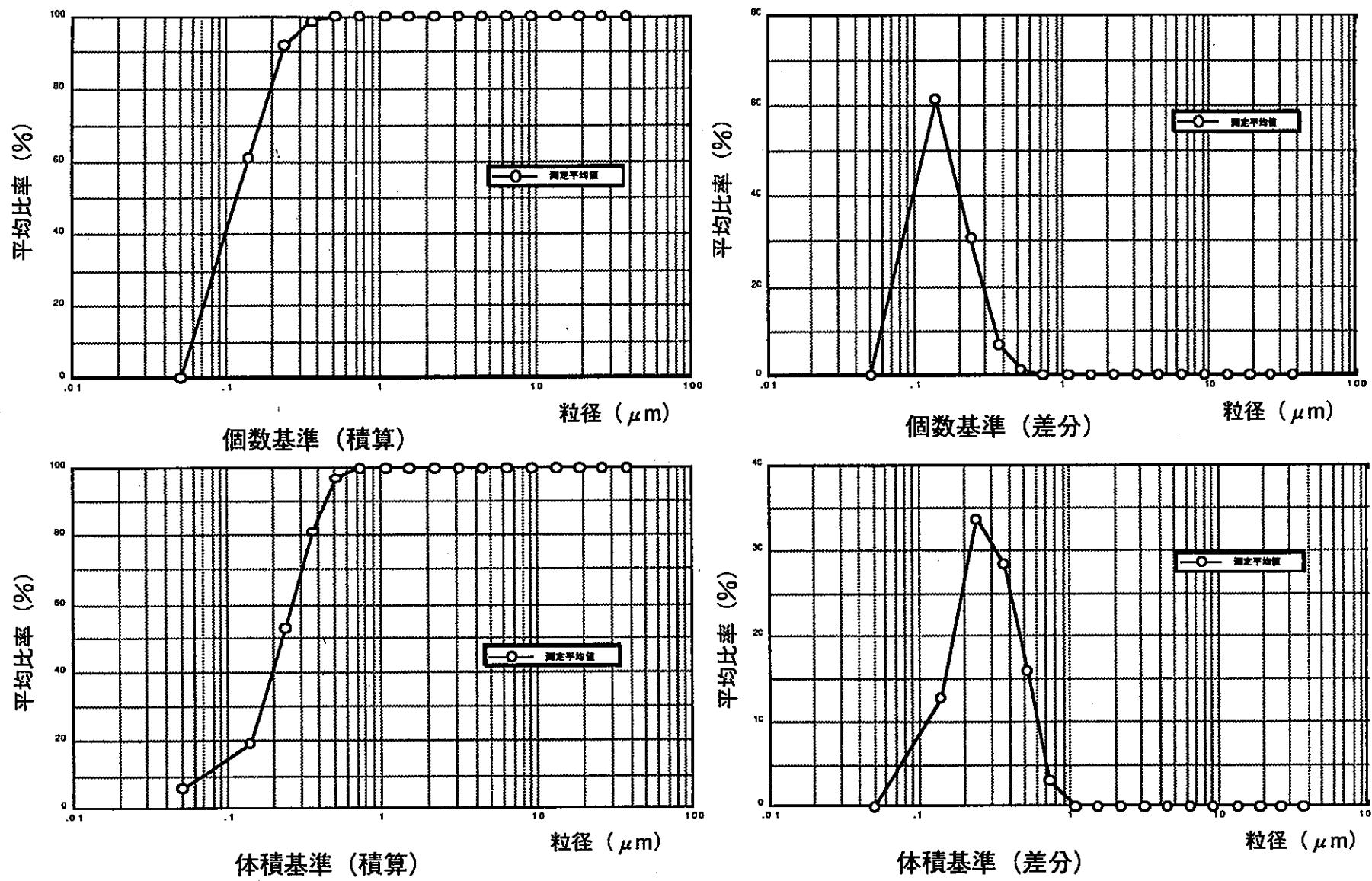


図 24-c

P-2の粒度分布図 (照射時間; 5M)

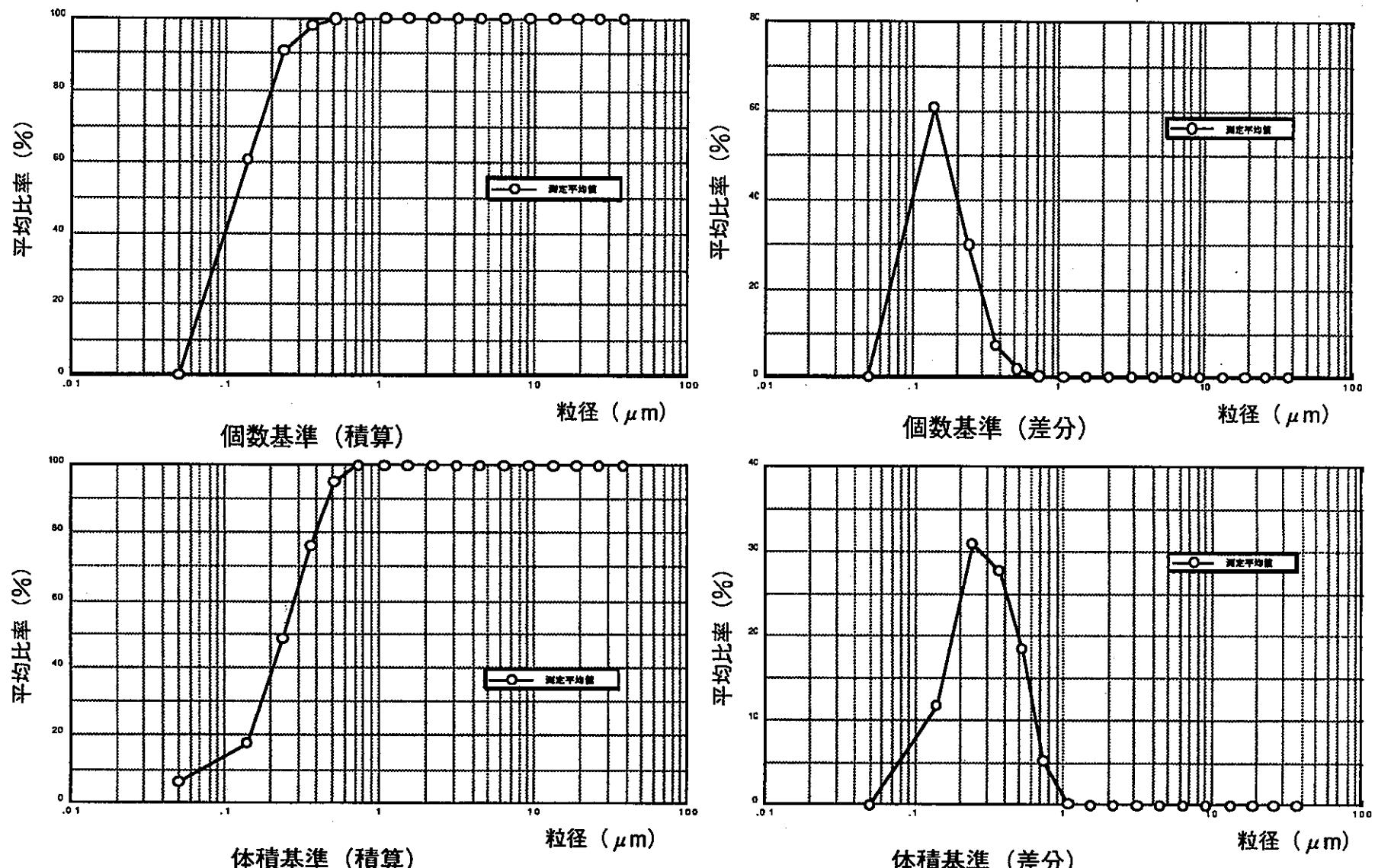


図 24-d

P-2の粒度分布図 (照射時間; 90M)

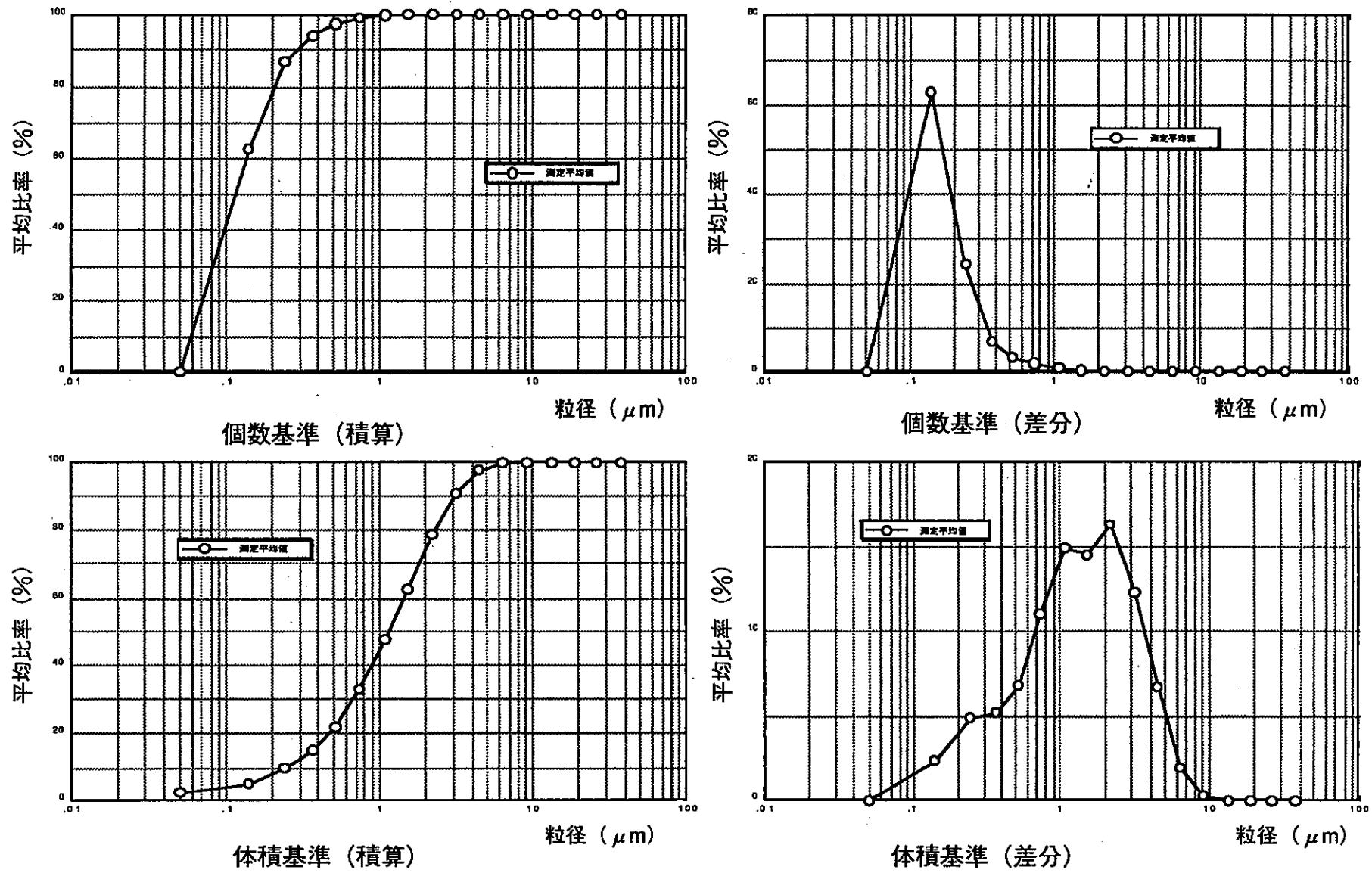


図 25-a M-1の粒度分布図 (照射時間; 0S)

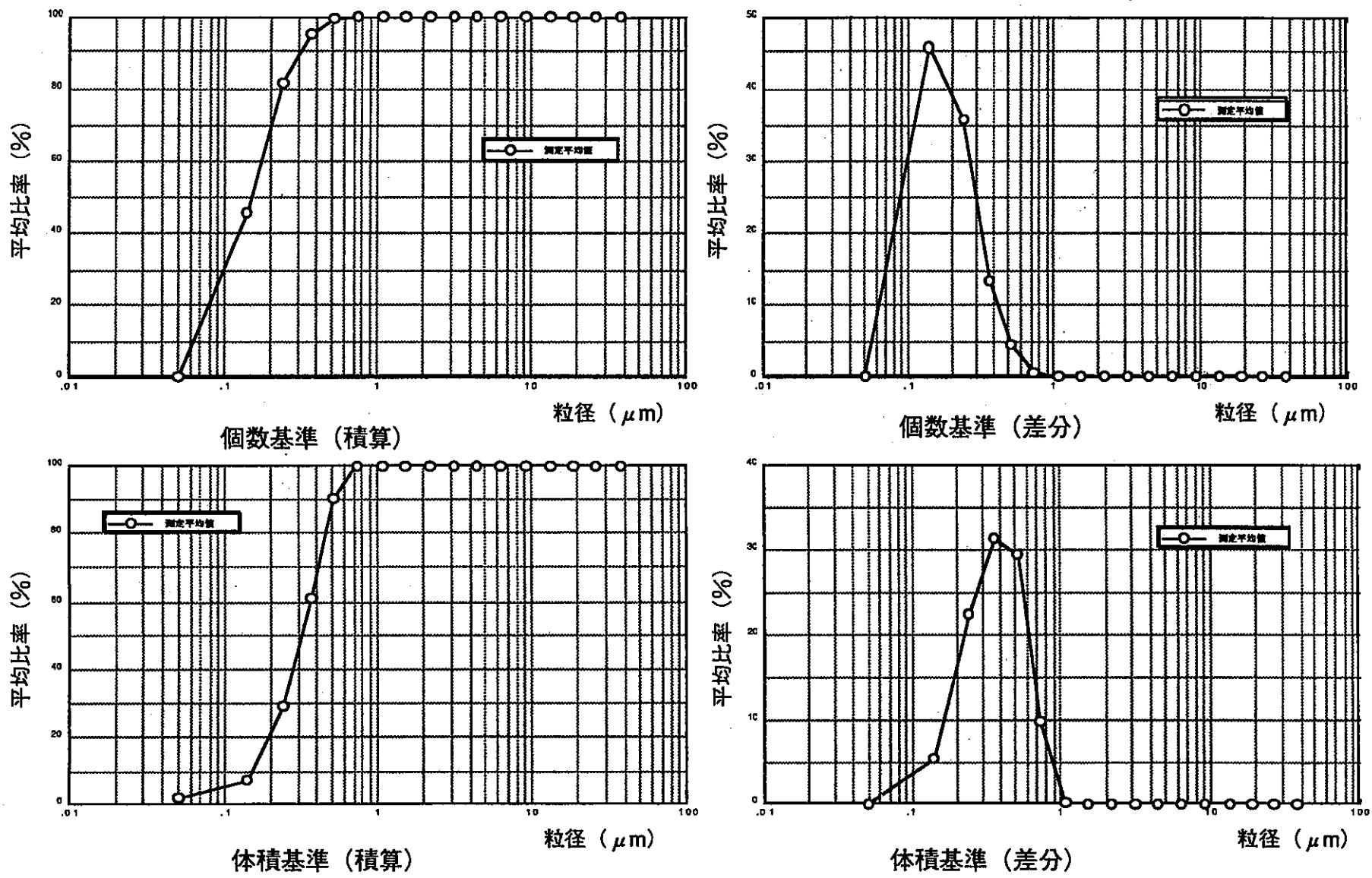


図 25-b M-1の粒度分布図 (照射時間; 180S)

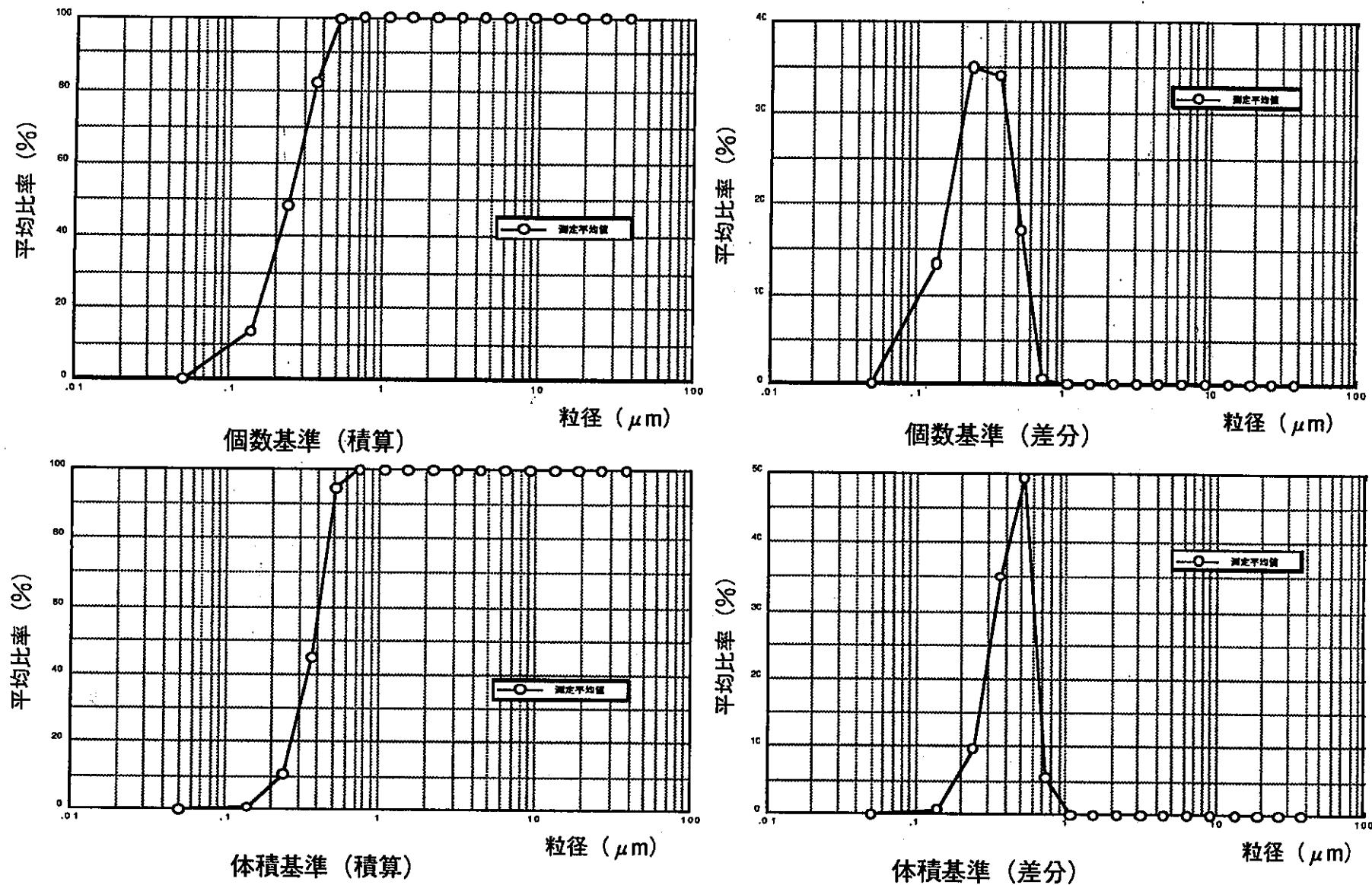


図 25-c

M-1の粒度分布図 (照射時間; 5M)

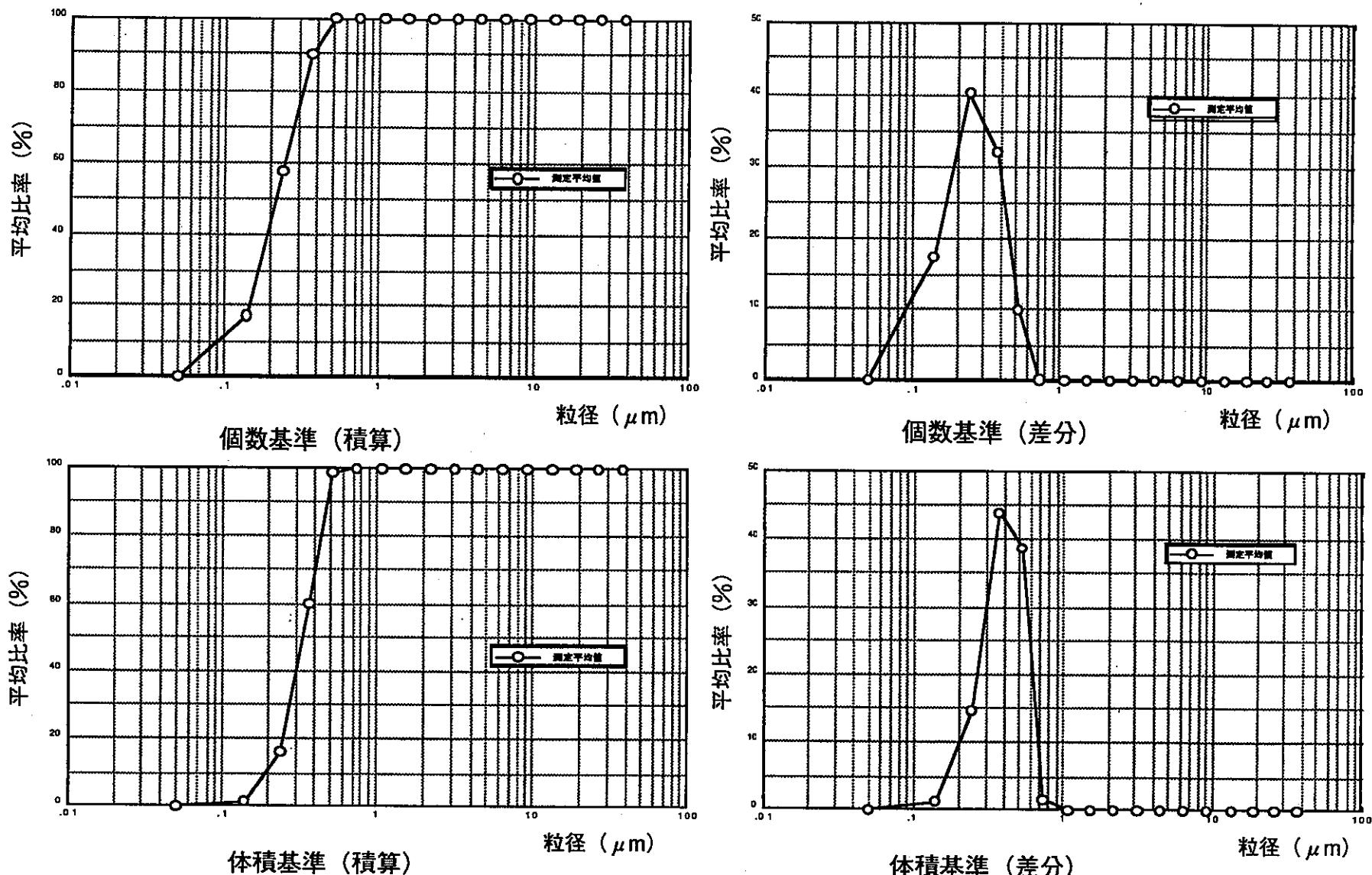


図 25-d

M-1の粒度分布図 (照射時間: 40M)

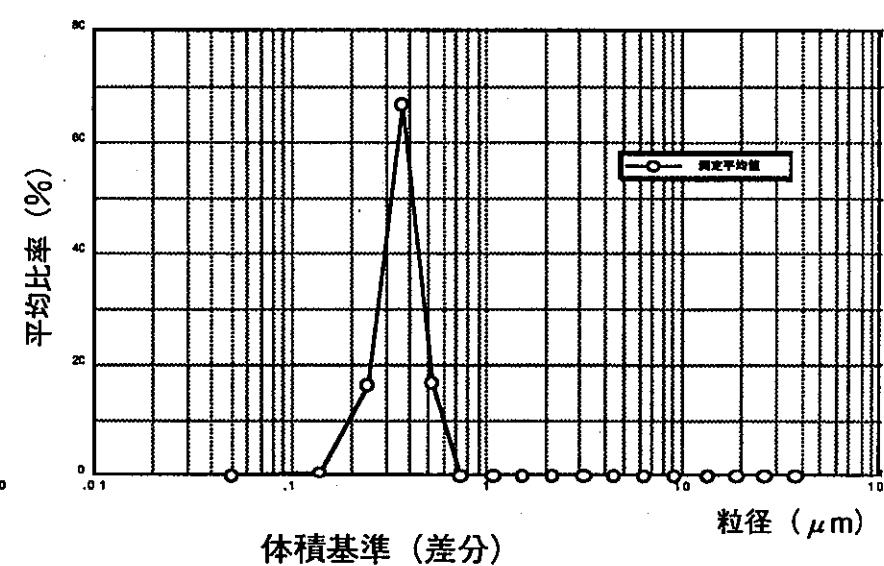
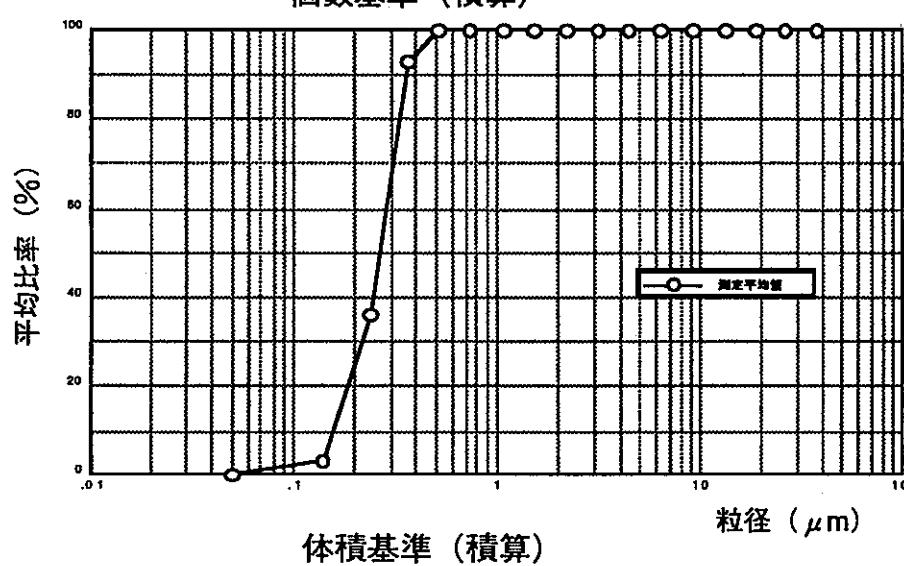
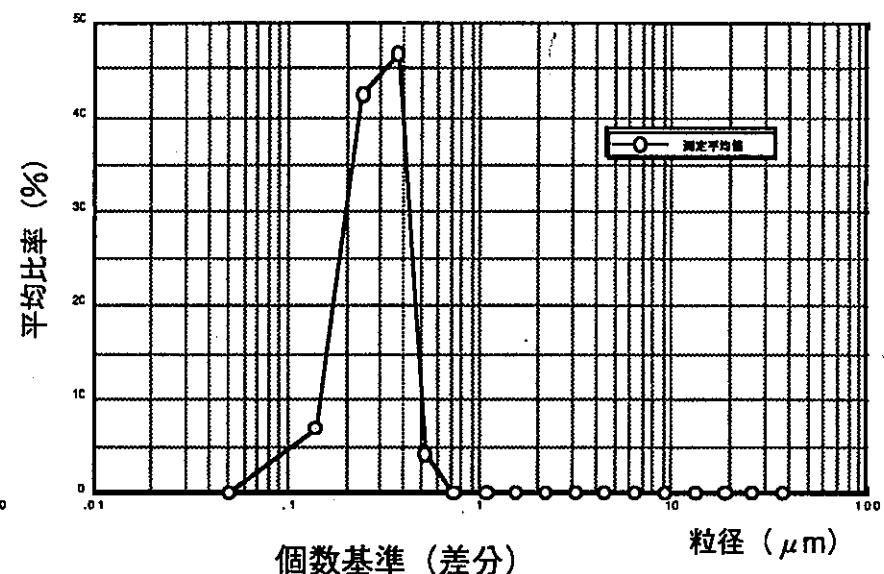
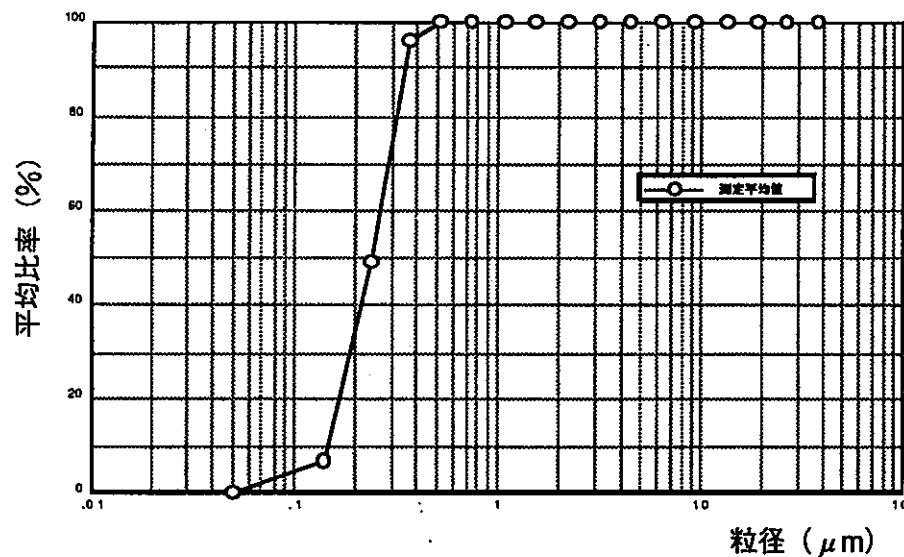


図 25-e M-1の粒度分布図（照射時間；60M）

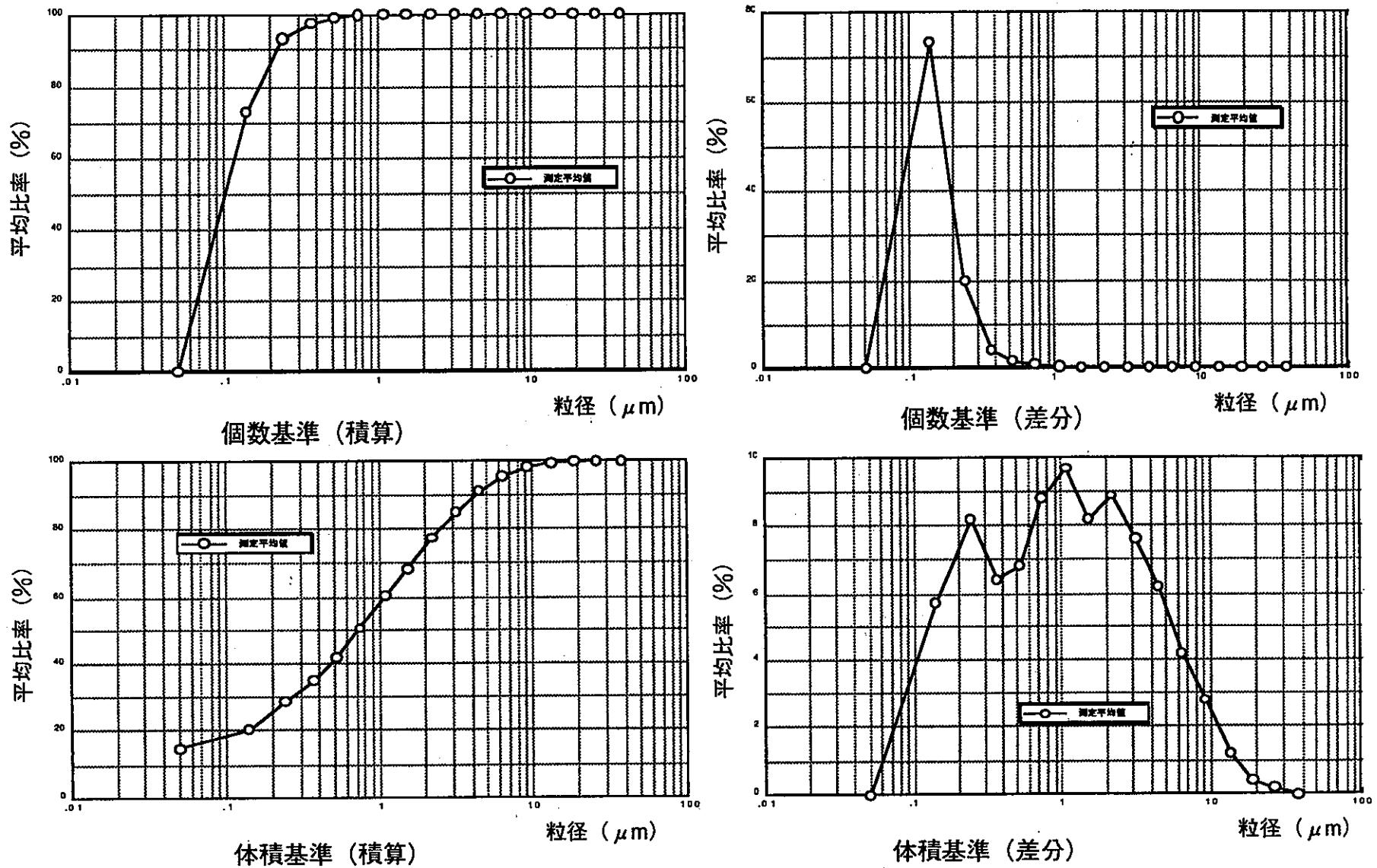


図 26-a

M-2の粒度分布図（照射時間；0S）

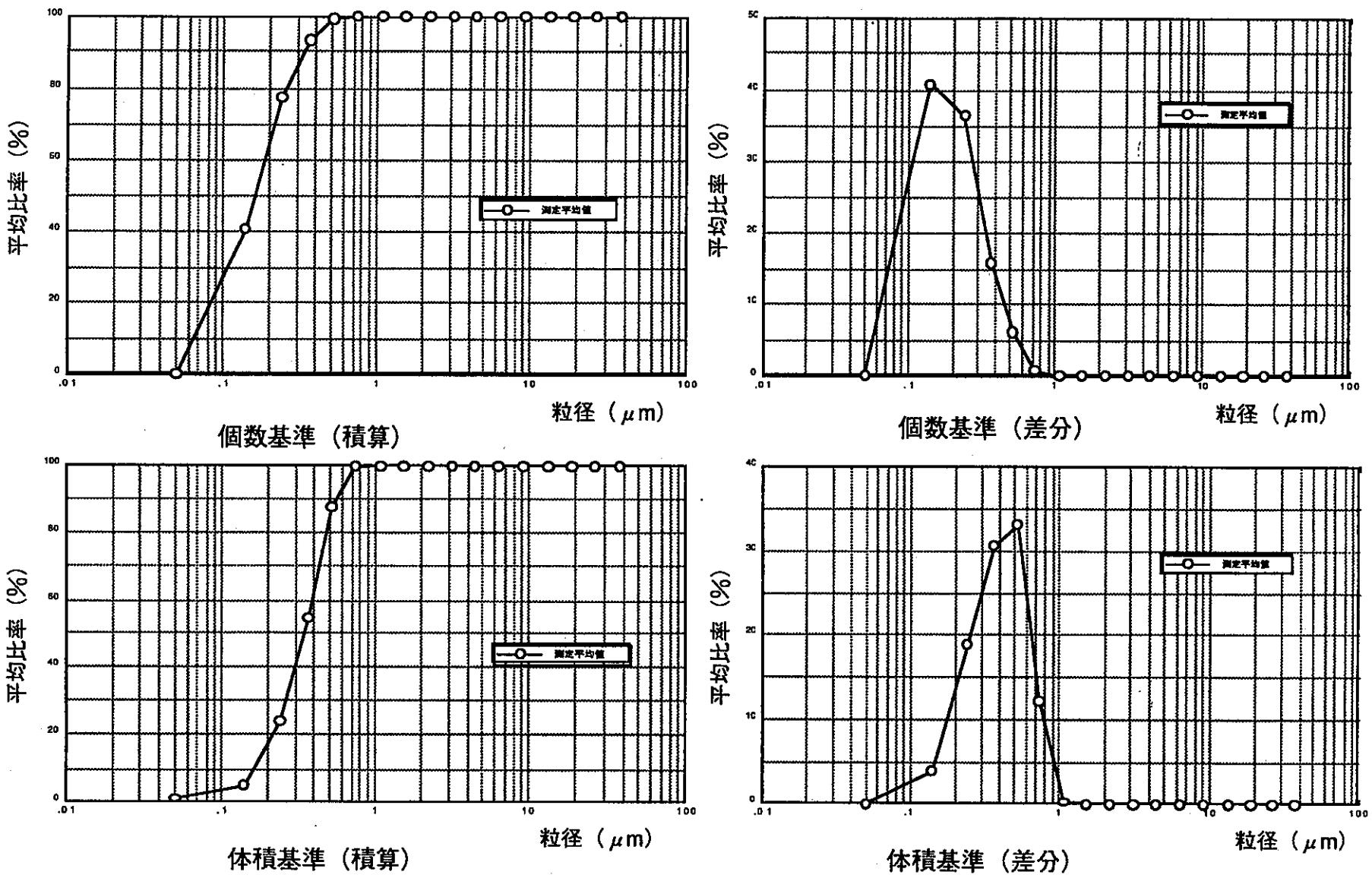


図 26-b

M-2の粒度分布図 (照射時間; 180S)

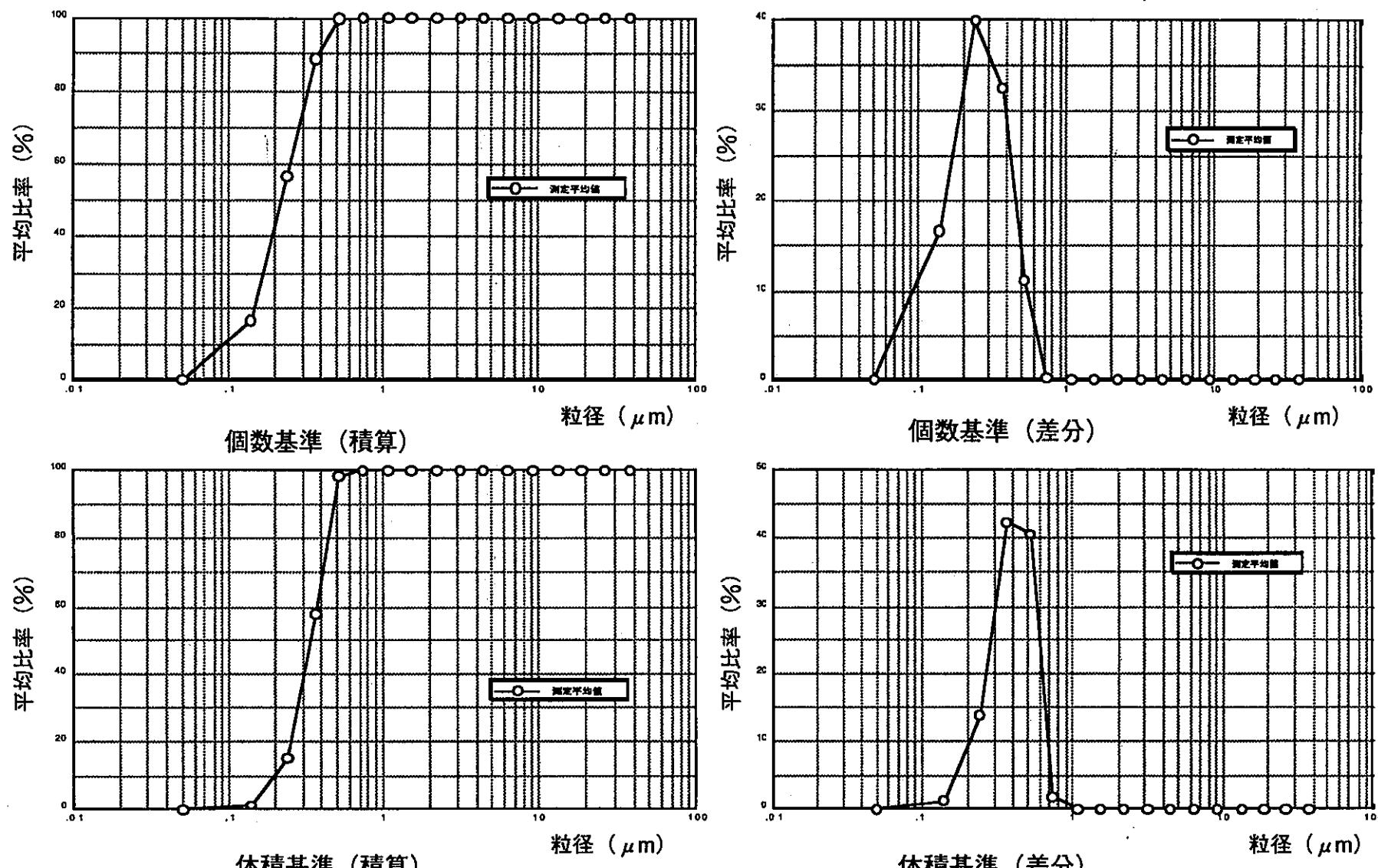


図 26-c

M-2の粒度分布図 (照射時間; 5M)

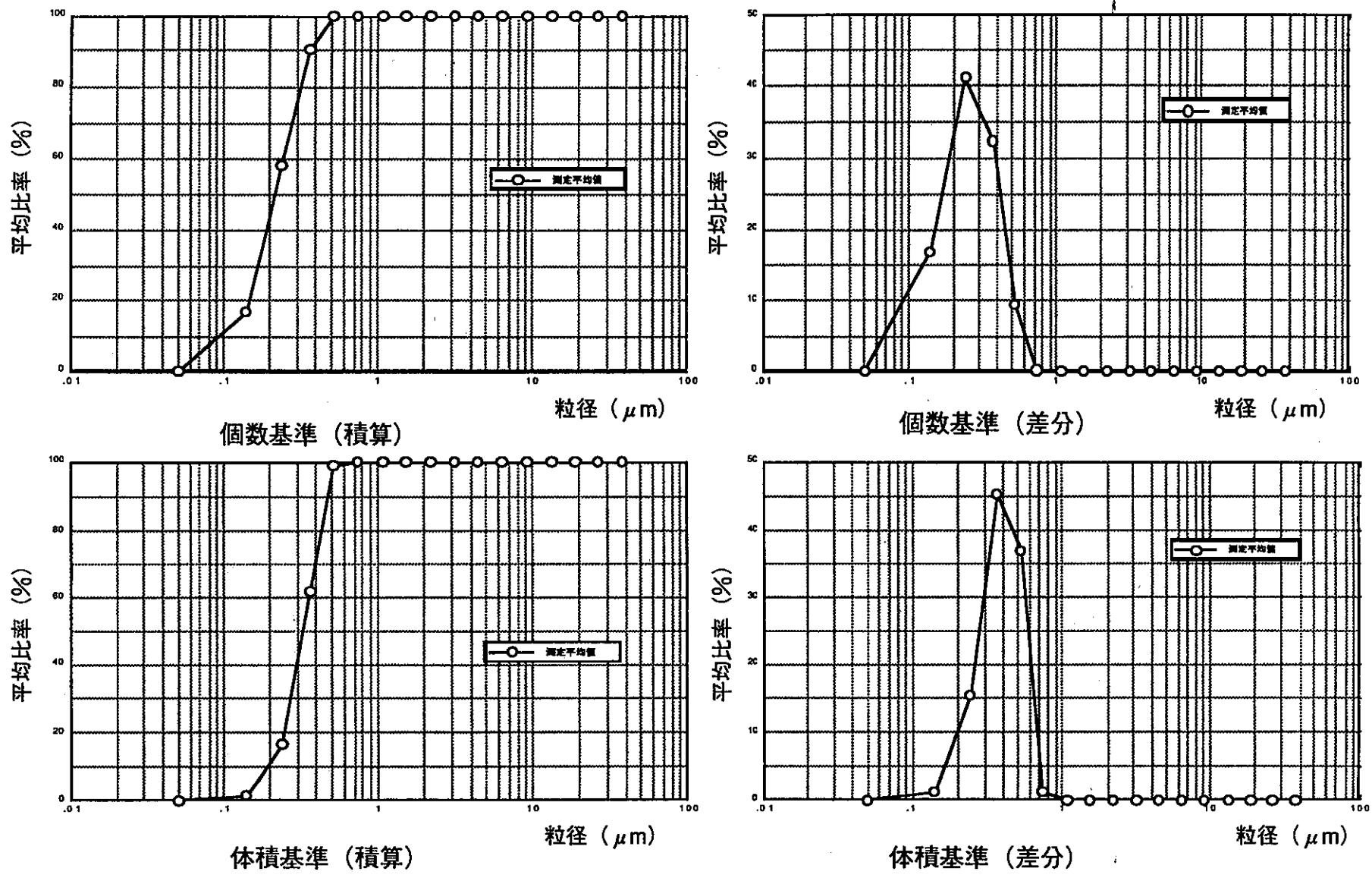


図 26-d

M-2の粒度分布図 (照射時間; 40M)

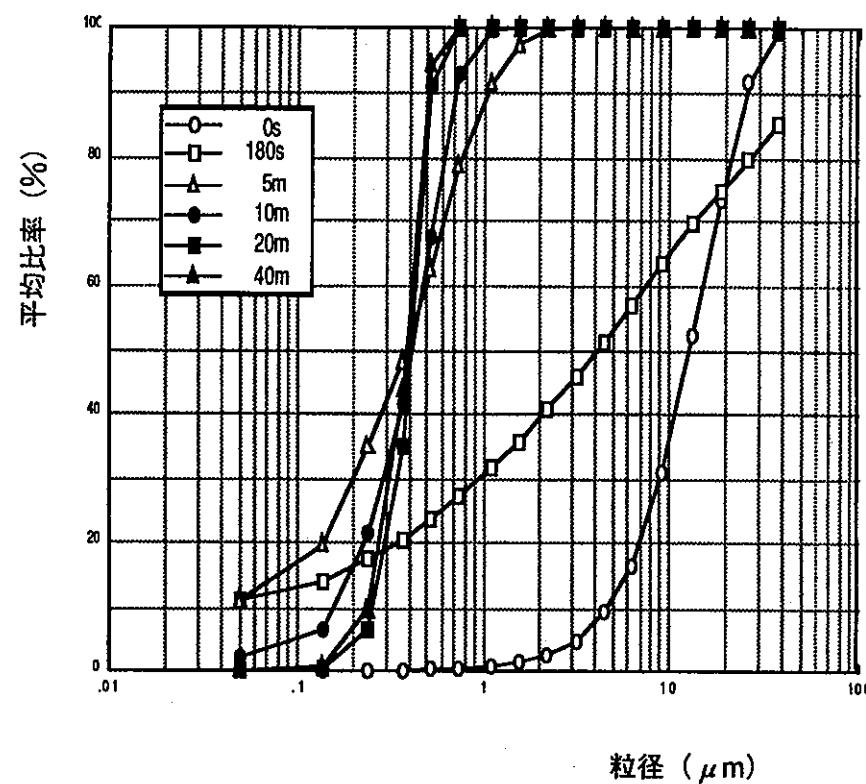
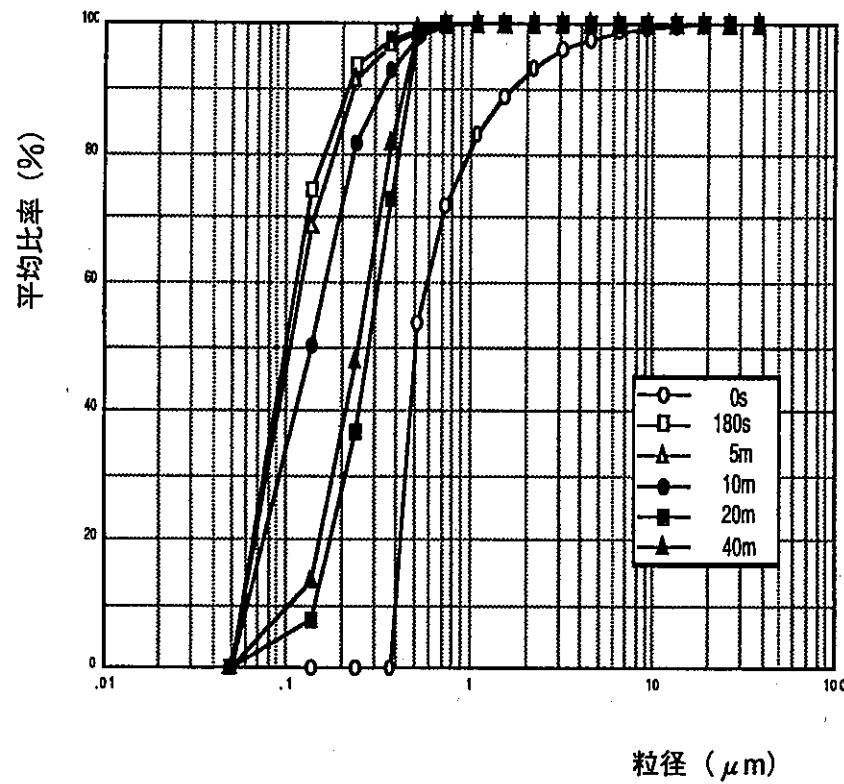


図 27

U-1の粒度分布図 (照射時間-平均径)

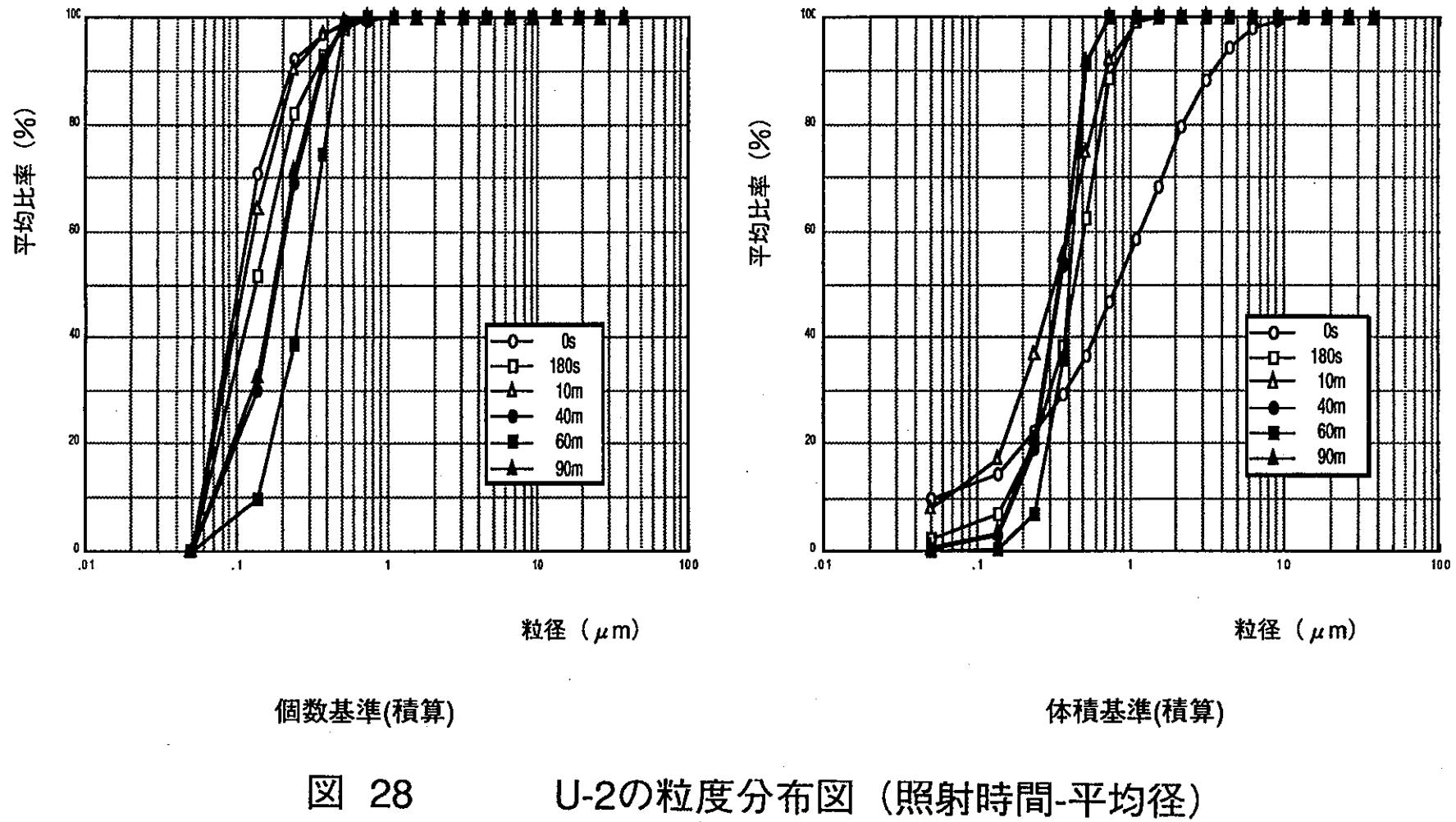


図 28

U-2の粒度分布図 (照射時間-平均径)

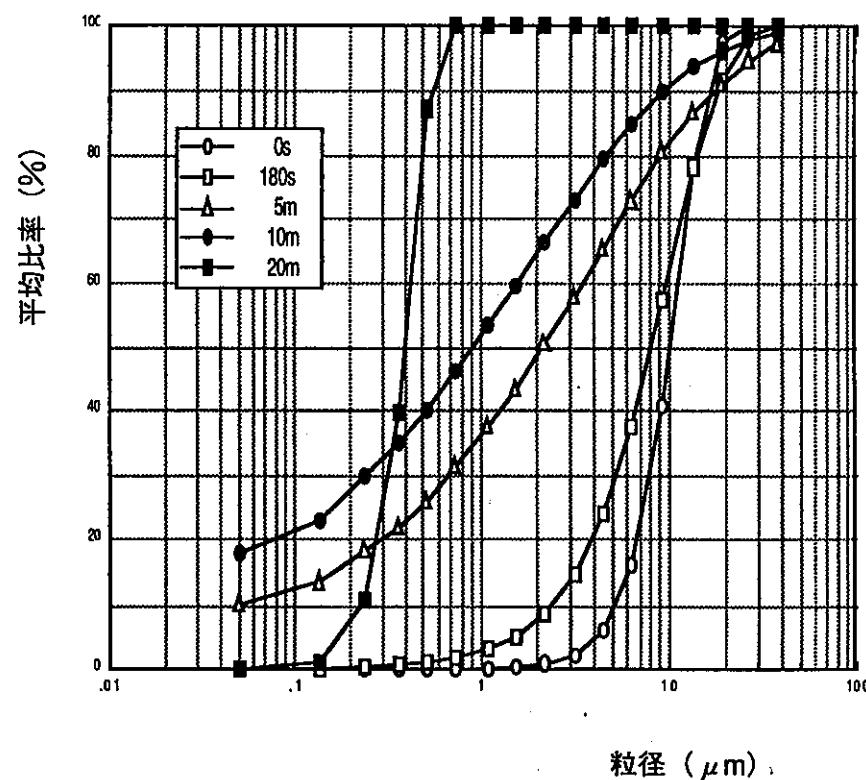
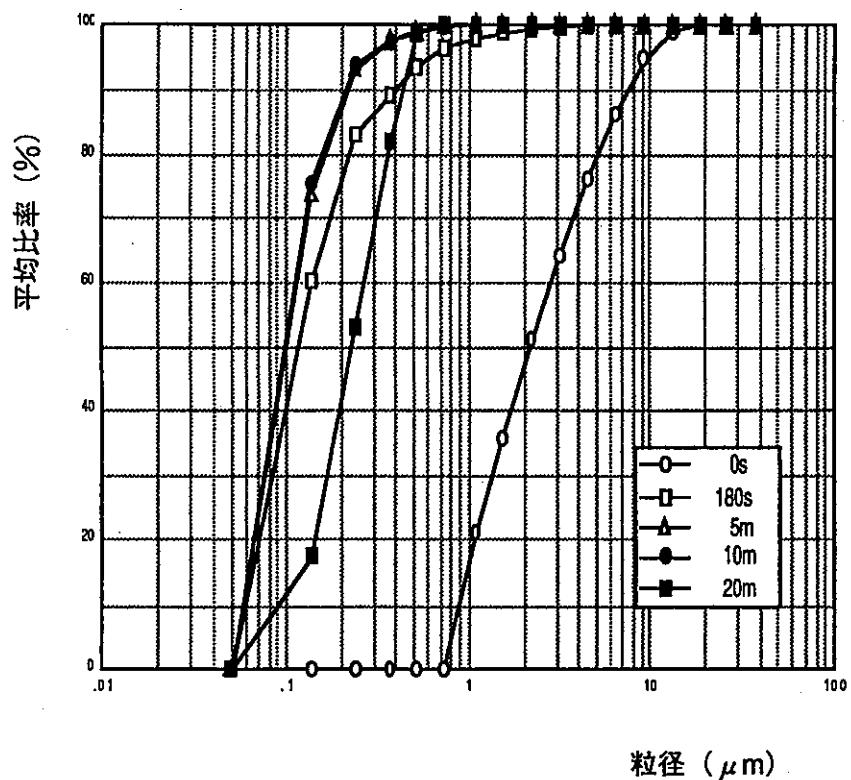


図 29

U-3の粒度分布図 (照射時間-平均径)

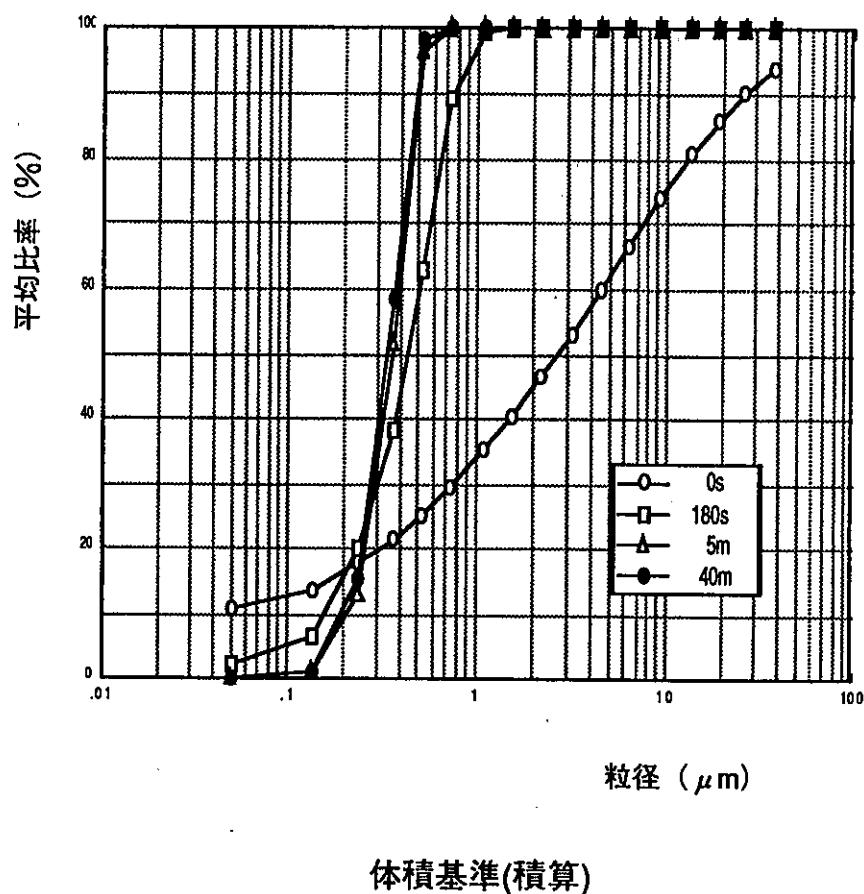
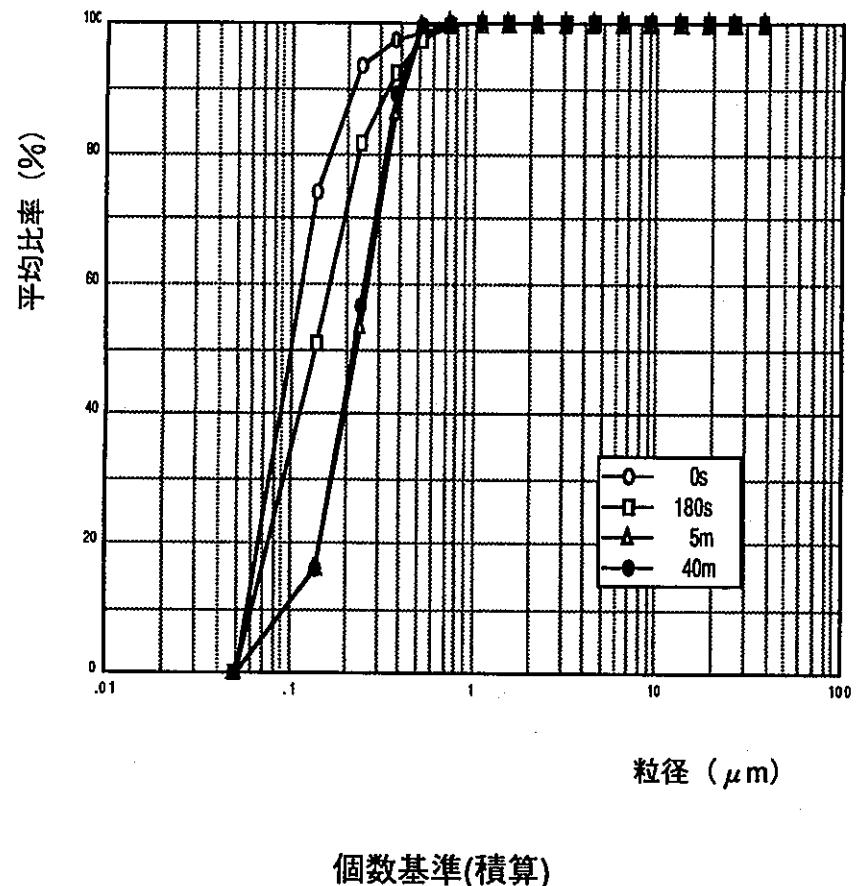


図 30

U-4の粒度分布図 (照射時間-平均径)

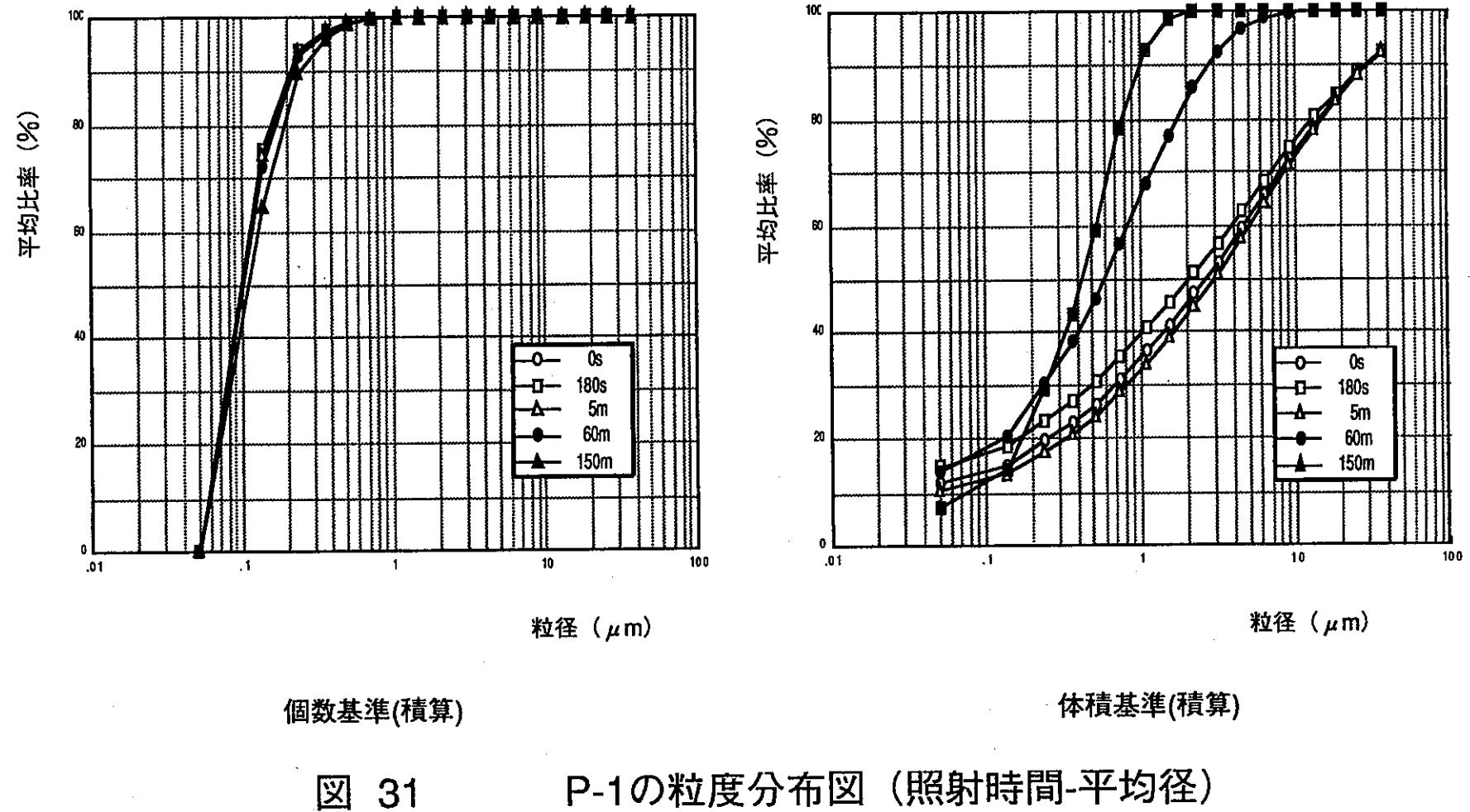
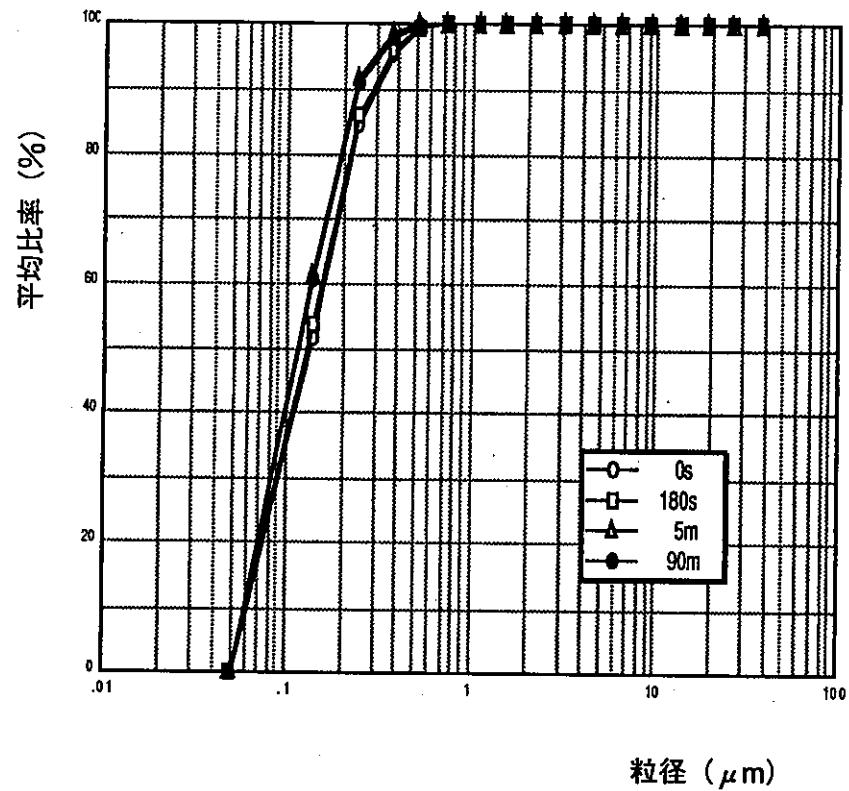
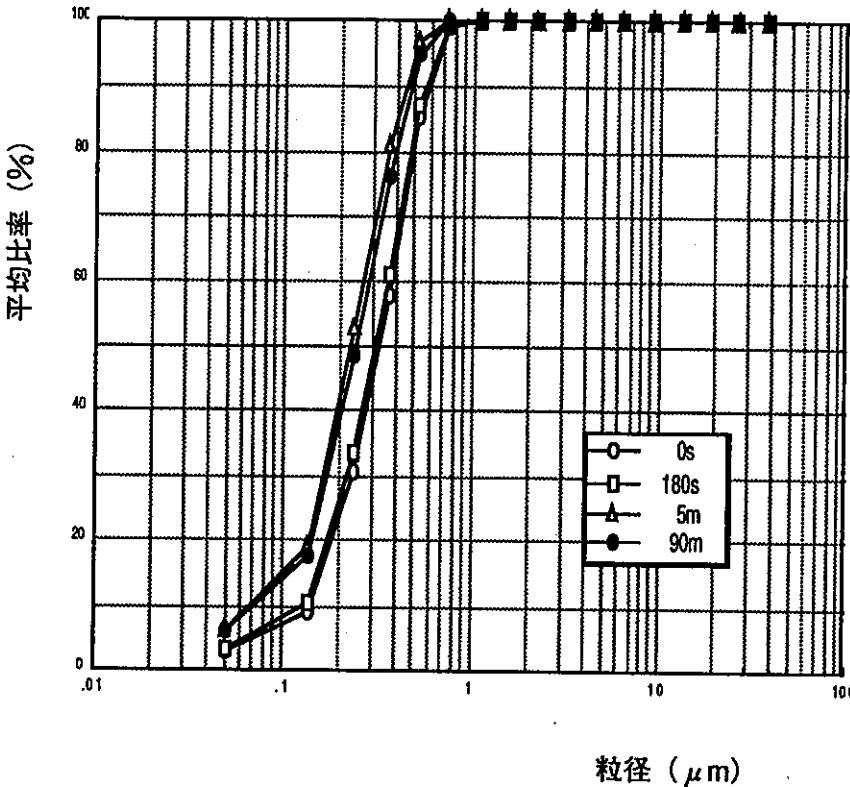


図 31

P-1の粒度分布図（照射時間-平均径）



個数基準(積算)



体積基準(積算)

図 32

P-2の粒度分布図 (照射時間-平均径)

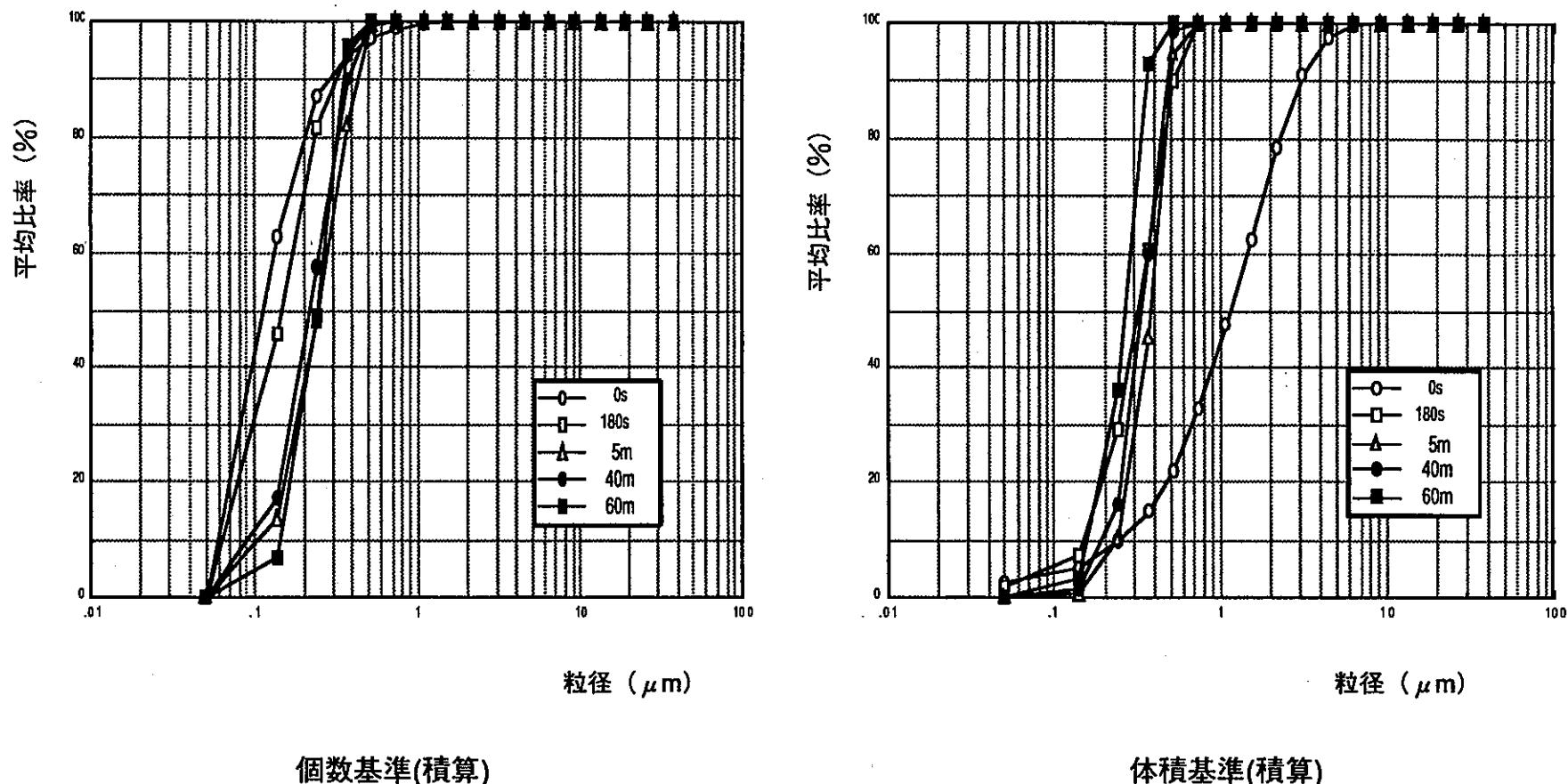
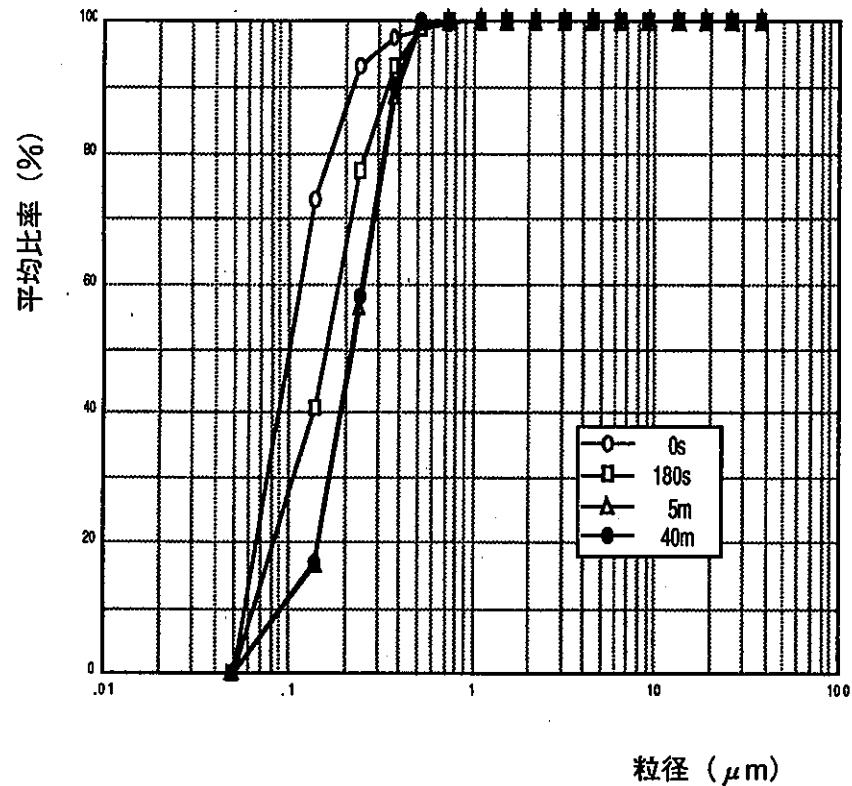
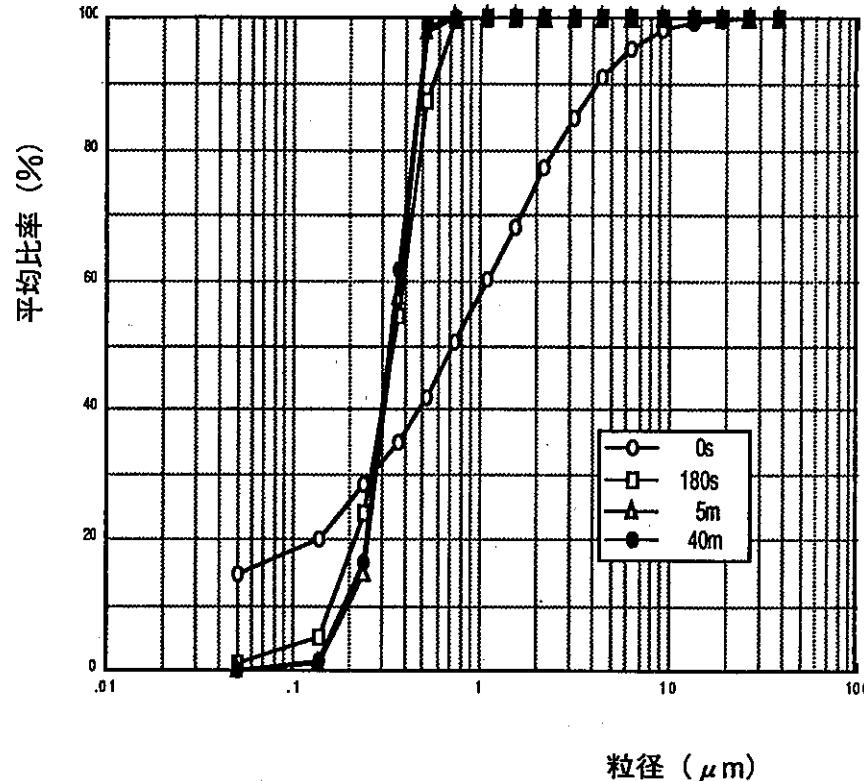


図 33

M-1の粒度分布図 (照射時間-平均径)



個数基準(積算)



体積基準(積算)

図 34

M-2の粒度分布図 (照射時間-平均径)

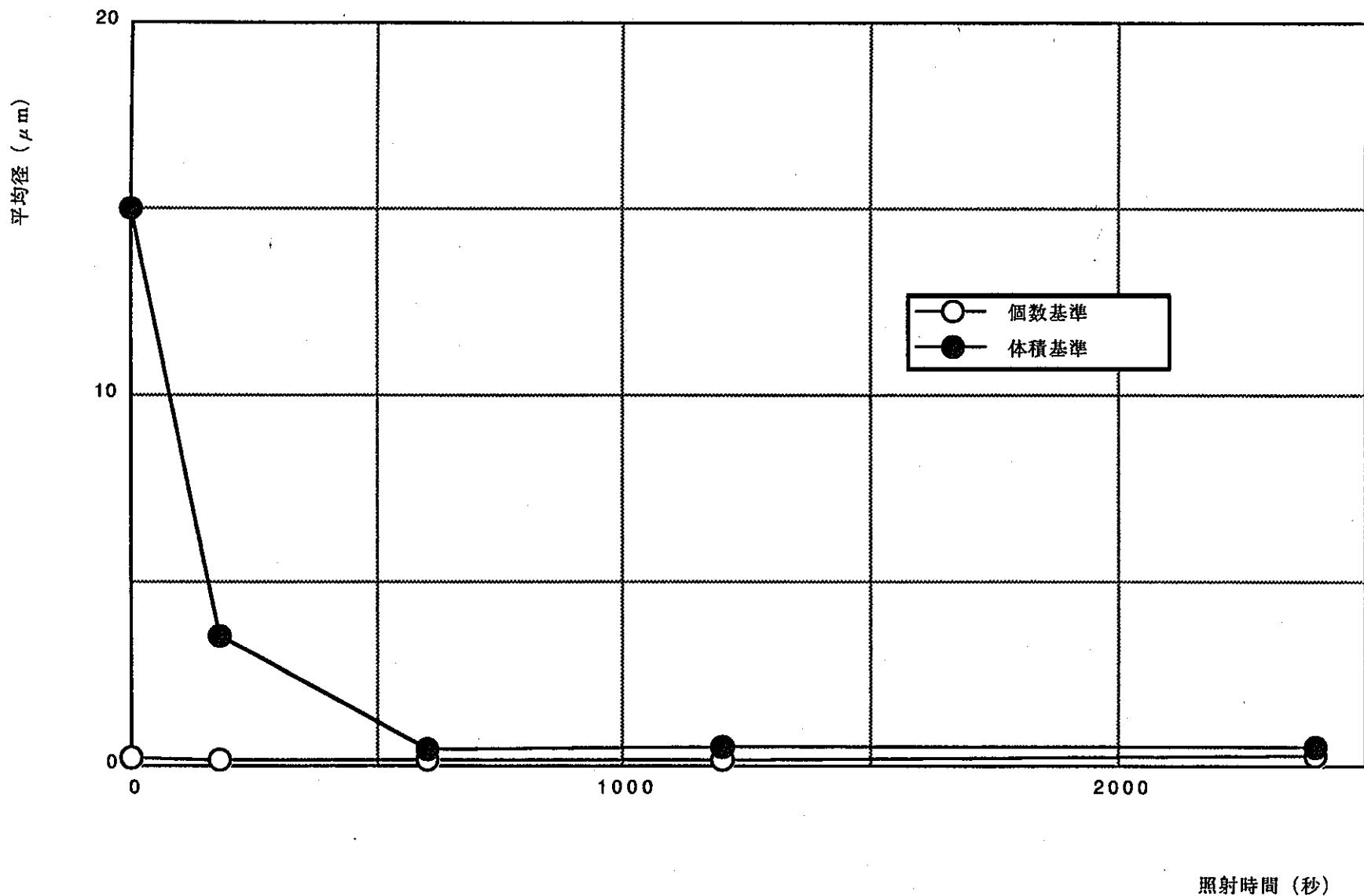


図35 U-1の粒度分布図（照射時間－平均径）

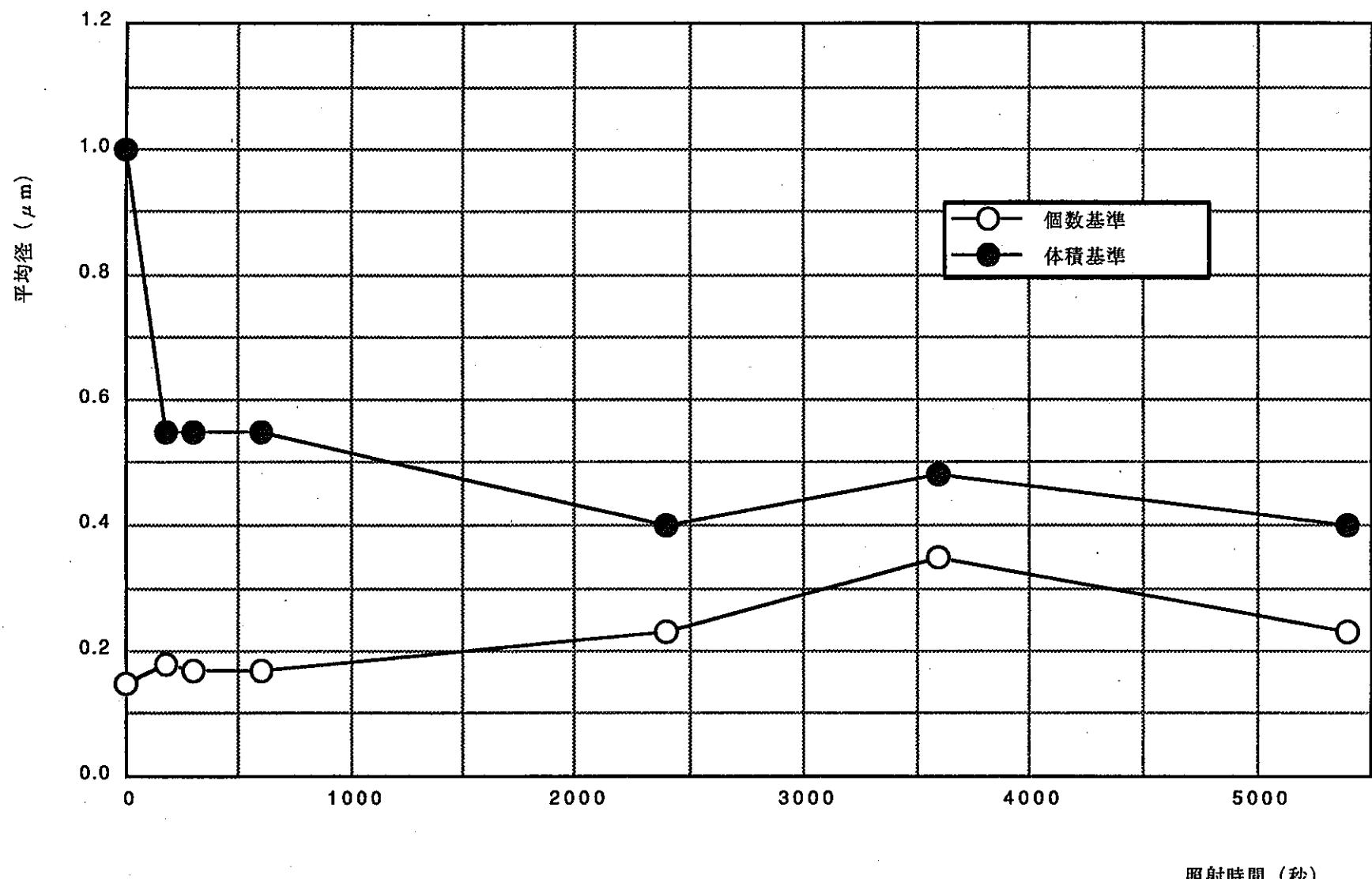


図36 U-2の粒度分布図（照射時間－平均径）

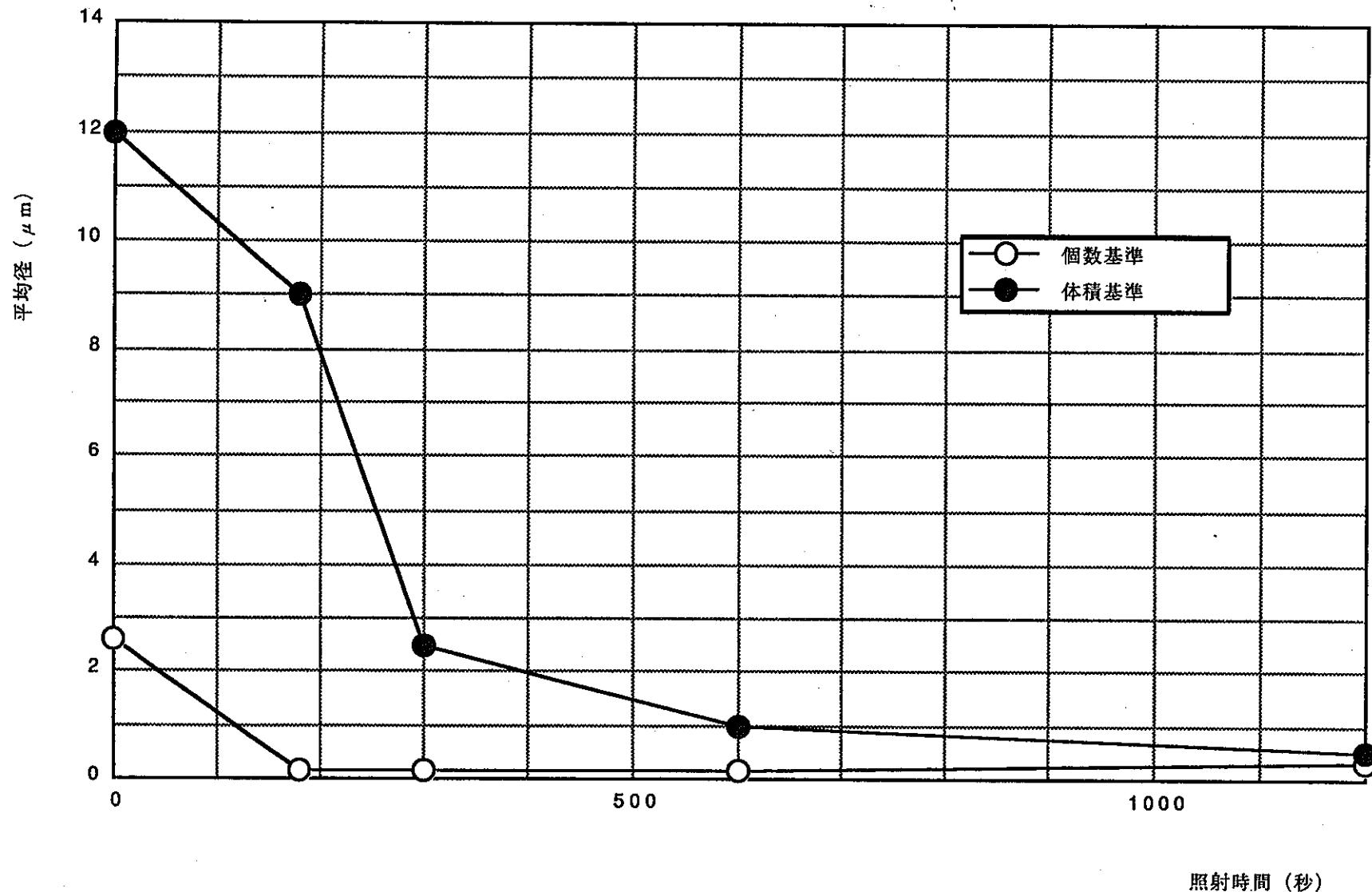


図37 U-3の粒度分布図（照射時間－平均径）

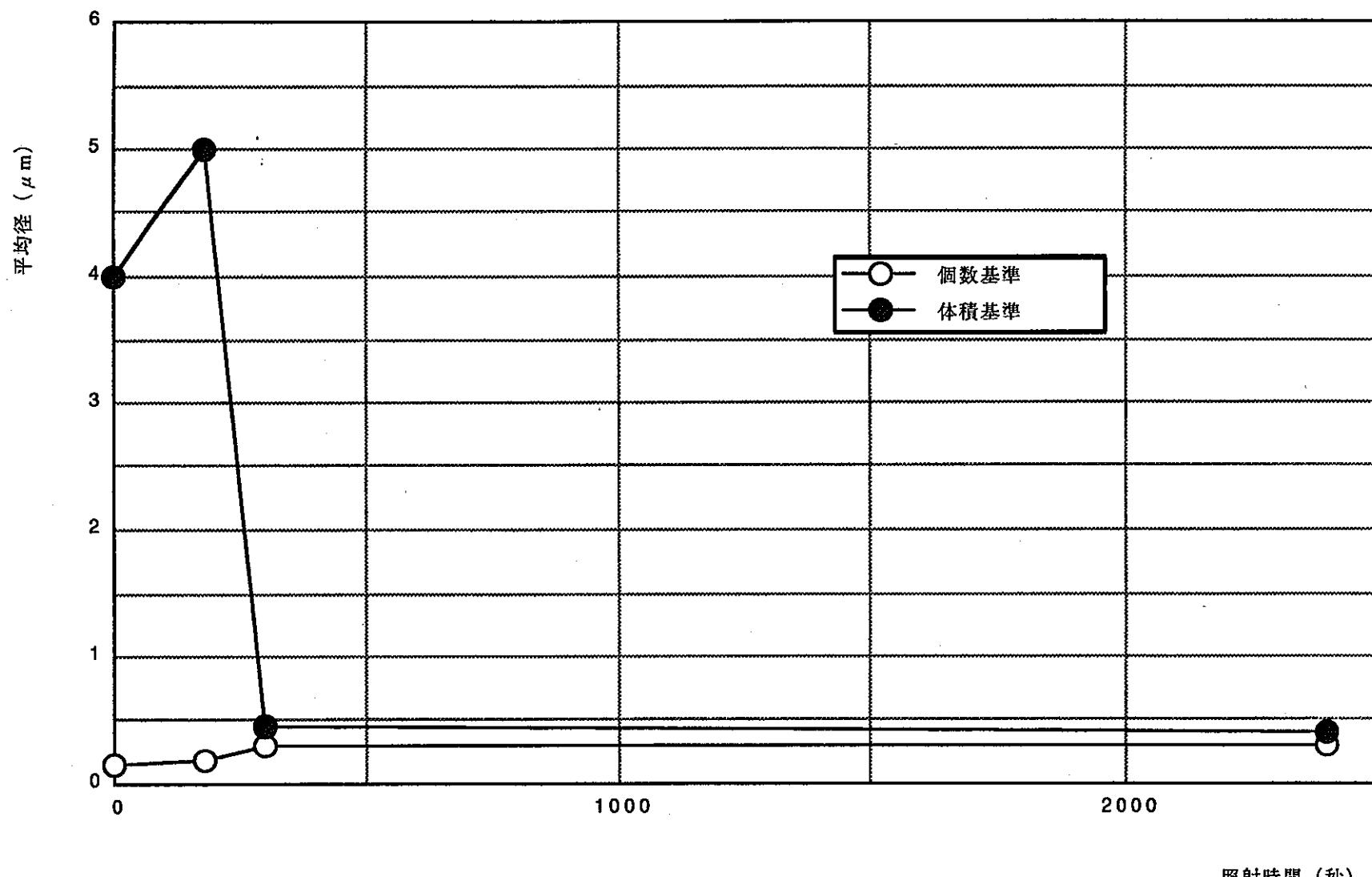


図38 U-4の粒度分布図（照射時間 - 平均径）

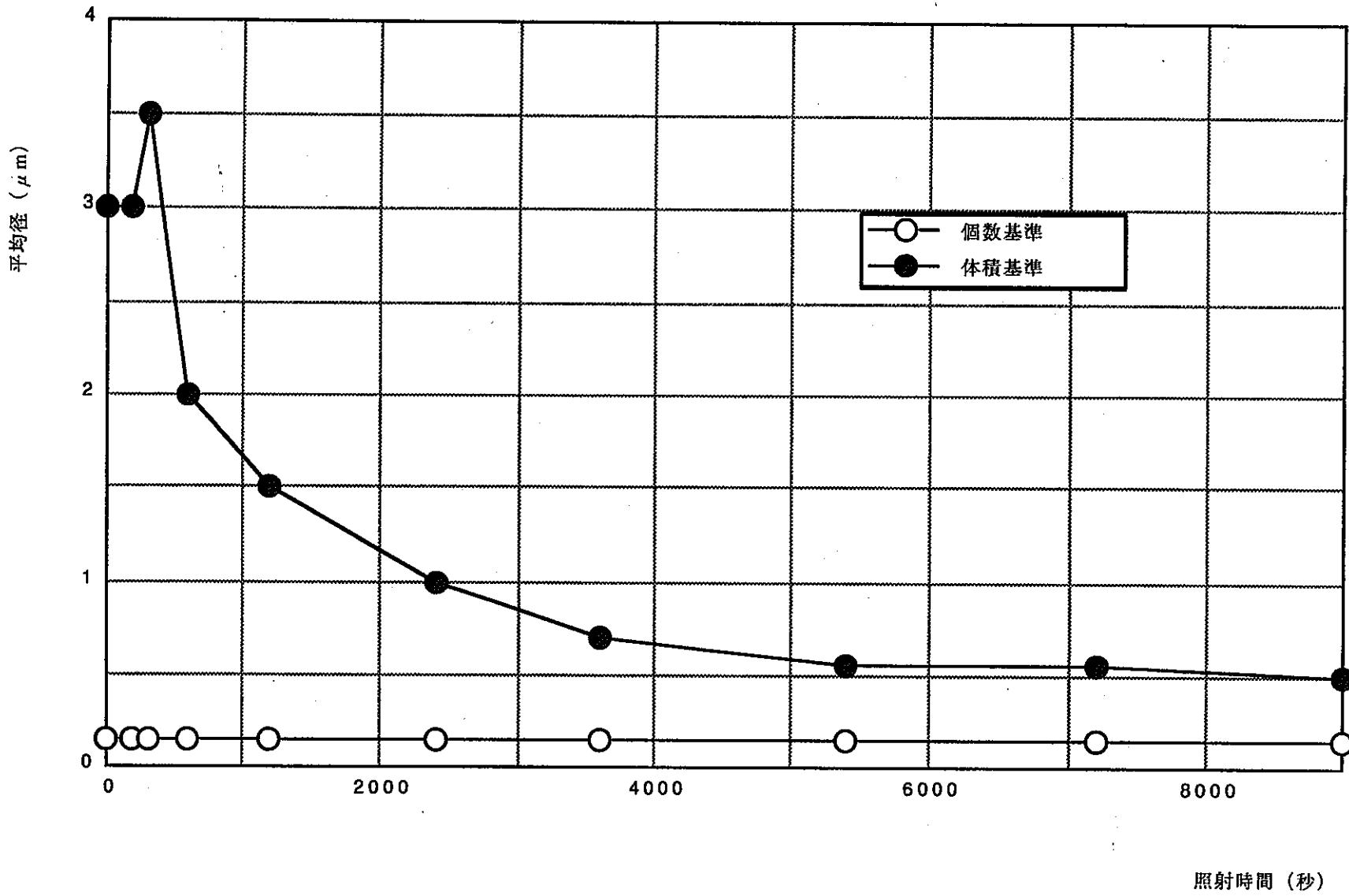


図39 P-1の粒度分布図（照射時間 - 平均径）

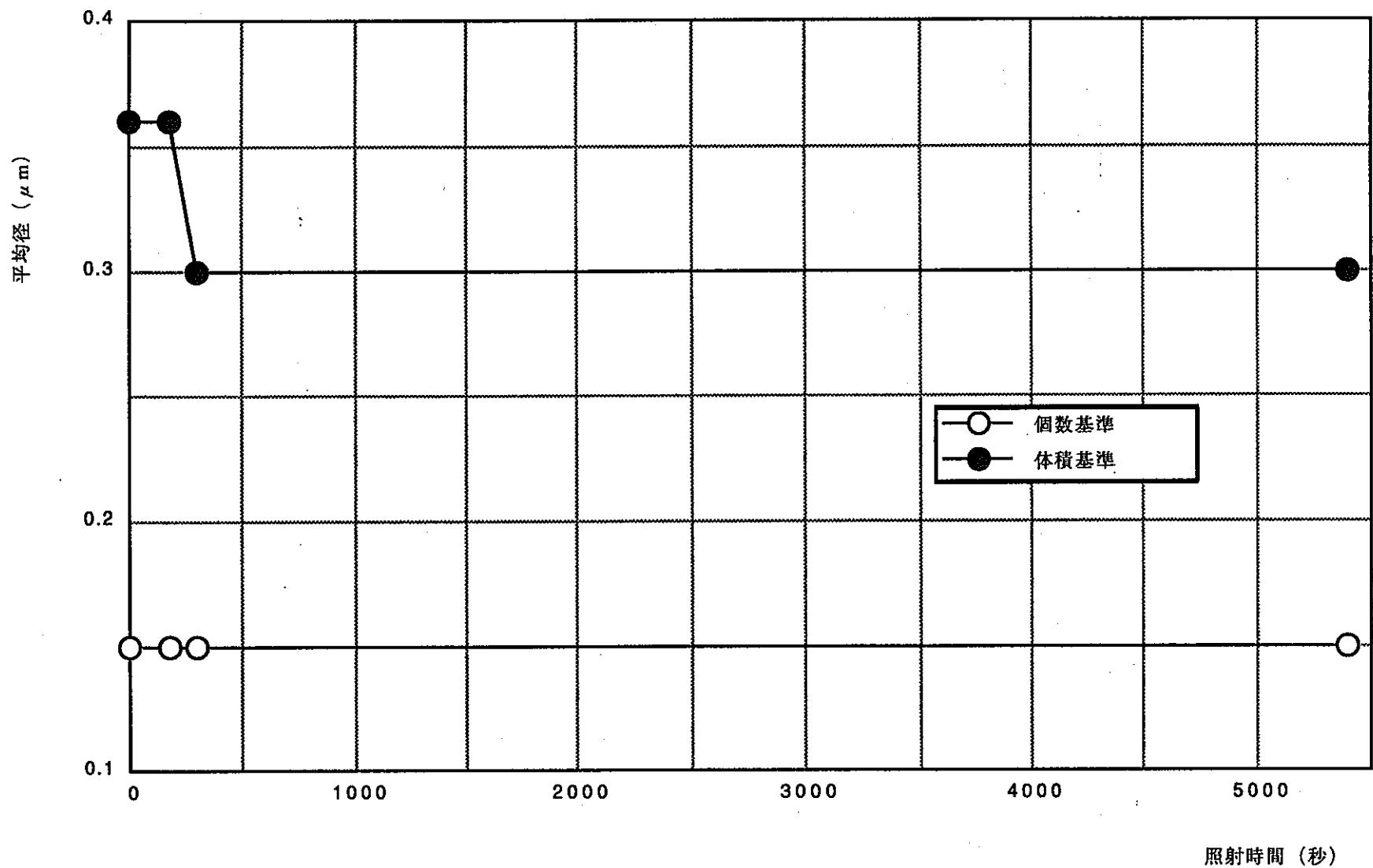


図40 P-2の粒度分布図（照射時間－平均径）

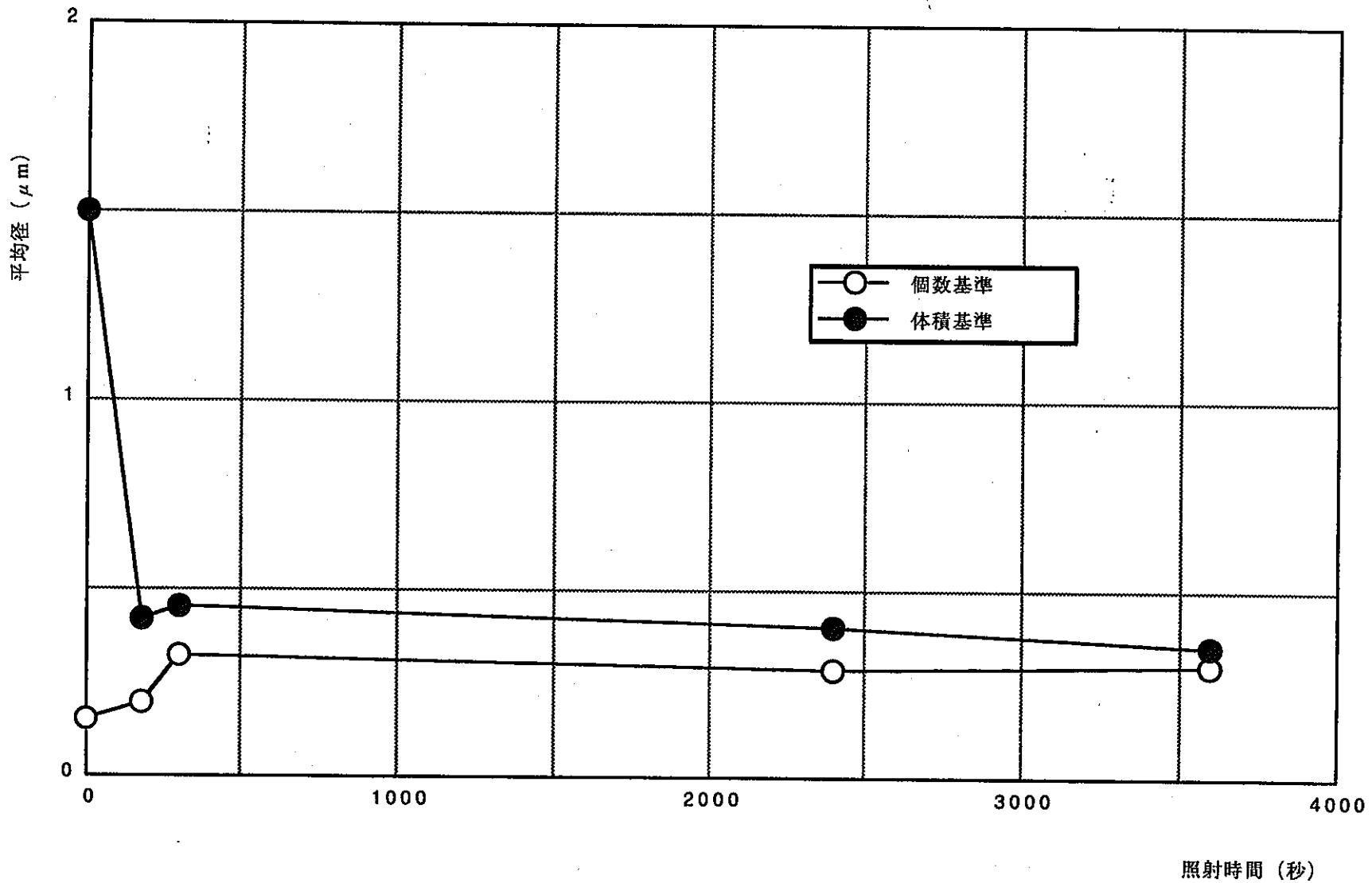


図41 M-1の粒度分布図（照射時間－平均径）

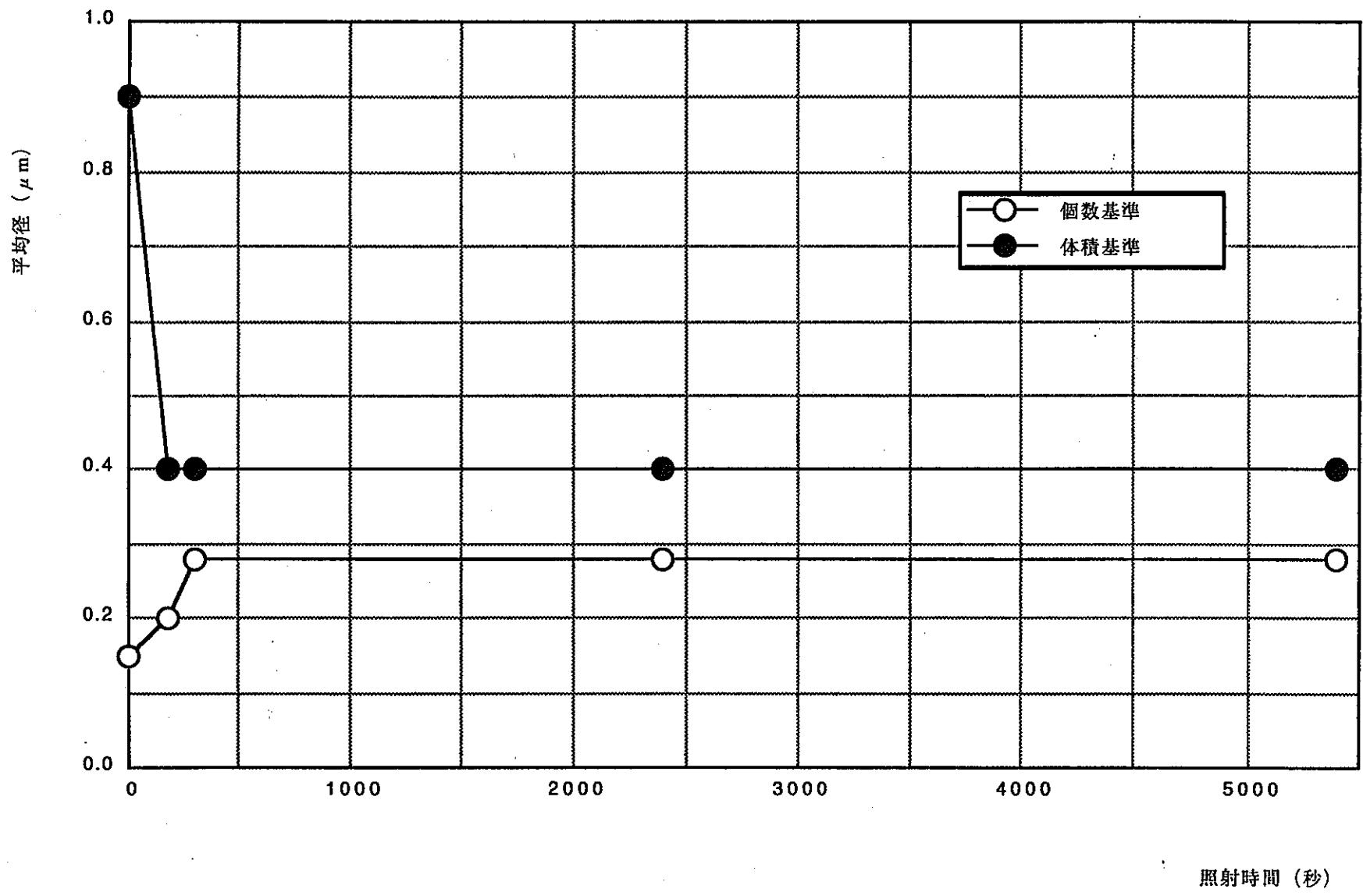


図42 M-2の粒度分布図（照射時間－平均径）

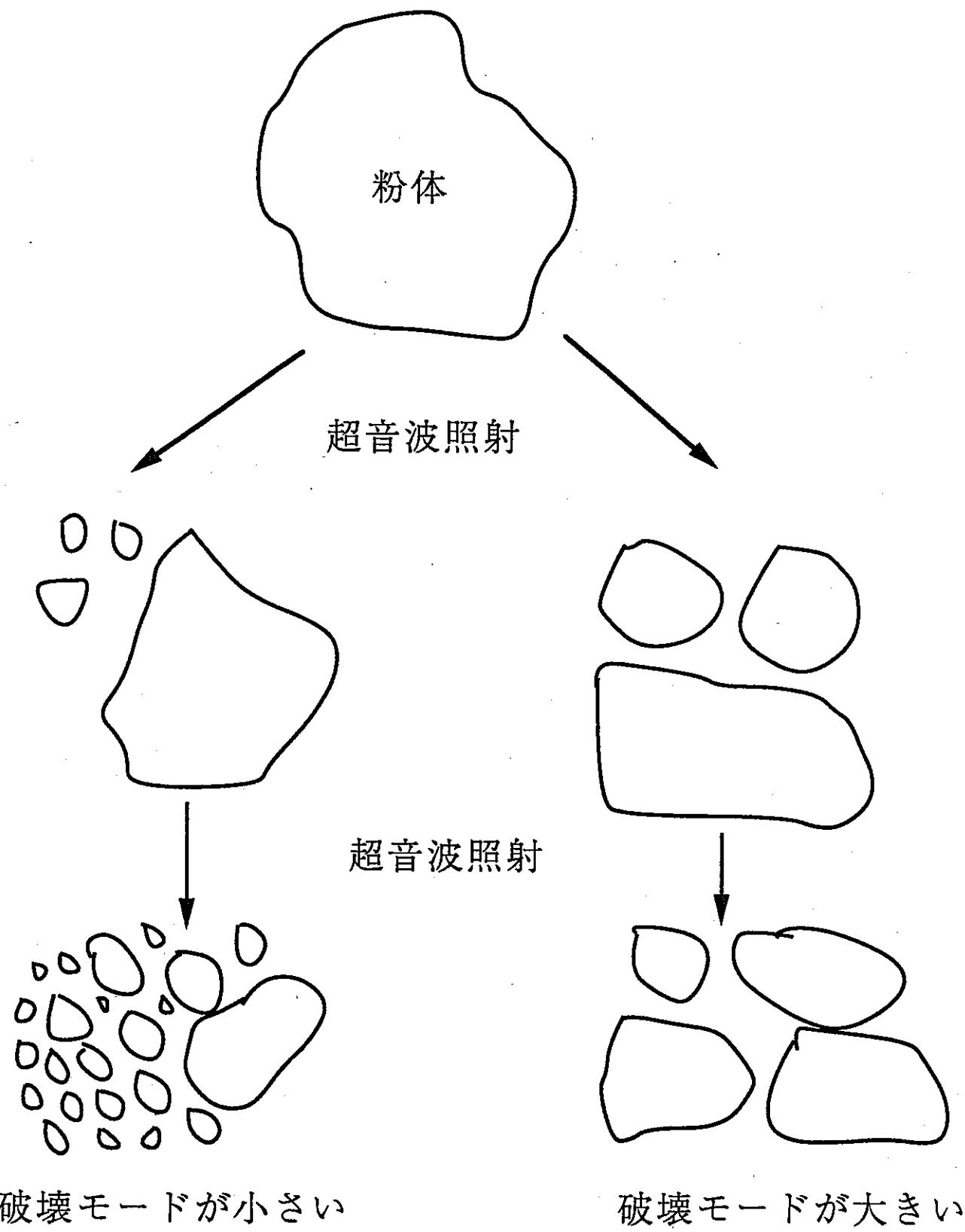


図43 破壊モードについて

## 付録 1

試料名	ロット番号	核物質区分	品 位	化学成分(不純物) (ppm)	製 法
12%-EUO <sub>2</sub> (U-1)	F U - 1 1	EU-602	0.87710	Ag<0.2 Cl<2 Mo<2 Al<15 Cr 9 N 3 B <0.1 Cu<1 Ni<4 C 26 F 20 Si 25 Ca<2 Fe<32 Sn<2 Cd<0.5 Mg<1	A D U
26.5%-EUO <sub>2</sub> (U-2)	L O T - 1	EU-102	0.87300	Ag<0.5 Cl<25 Mo<3 Al 5 Cr 8 N <10 B <0.3 Cu 5 Ni 9 C 138 F <10 Si 8 Ca 14 Fe 76 Sn<10 Cd<0.5 Mg 7	A U C
DUO <sub>2</sub> (U-3)	L1U003	DU-705	0.87840	Ag<0.2 Cr<3 Ni<7 Al 5 Cu<1 Si<12 B <0.2 F 3 Sn<2 C 20 Fe<15 Ca<2 Mg<1 Cd<0.5 Mo<2 Cl<2 N 20	A D U
NUO <sub>2</sub> (U-4)	FC3-11	NU-518	0.87660	Ag<0.2 Cr<2 Ni<4 Al<15 Cu<1 Pb<2 B <0.1 F 2 Si<10 C 25 Fe<13 Sn<2 Ca<2 Mg<1 Th<3 Cd<0.5 Mo<2 Dy+Eu+Gd Cl<2 N 8 +Sm<0.3	A D U
湿回粉 (M-1)	INTA-1回収	Pu-746 EU-746	0.16770 0.67850	B <5.0 Si<620 Cd<5.0 Ag, Al, Ca, Cu Cr>1000 Mo, Pb, Sn Fe 5075 7128 Mg<15 N <120 Ni 140	MH法(転換)
1:1 MOX (M-2)	AM0035	Pu-709 EU-506	0.43000 0.01110	—	MH法(転換)
BNFL (P-2)	J - 0 1 2	Pu-659	0.87010	Ag<0.2 Mg<2 Pb 65 Al<10 Mn<6 Sn<10 B <0.6 Ni 10 Ca 70 Ca<1.0 Si<20 C 55 Cr<10 V <10 Cl<10 Cu<1 Zn<50 F <10 Fe<10 Mo<10 N <50	蔴酸沈殿法
COGEMA (P-1)	2 3 7	Pu-619	0.85325	Ag<0.2 Cu<1 Sn<10 Al<10 Fe<10 Pb 30 B <0.3 Mg<2 Mn<6 Ca<10 Mo<10 V <10 Cd<0.6 Ni<10 Zn<50 Cr<10 Si<10	蔴酸沈殿法

## 付録 2

試料番号U-1, U-3およびU-4については、JCO（日本核燃料コンバージョン）より入手したものである。以下にこの試料の製造条件を示す。

	U-1	U-3	U-4
沈殿ウラン濃度	45 g-U/1	45 g-U/1	45 g-U/1
沈殿温度	40°C	40°C	40°C
沈殿時間	30分	30分	30分
仮焼温度	600°C	U-1よりも高い	U-1よりも高い
還元温度	625°C	625°C	625°C
粉碎処理	無	無	有