



# ショートプロセスによるペレット製造方法の基礎的検討

牧野 崇義 武内健太郎 加藤 明文\* 大代 操 遠藤 秀男

東海事業所 プルトニウム燃料センター 製造加工部

\*原子力技術株式会社

Development of the Simplified MOX Fuel Fabrication Process (Short Process)  
- Fundamental Examination of the Pellet Fabrication Process -

Takayoshi MAKINO Kentaro TAKEUCHI Akebumi KATO \* Misao DAIDAI Hideo ENDO

Plutonium Fuel Fabrication Division, Plutonium Fuel Center, Tokai Works

\* Nuclear Technology & Engineering Co.Ltd

プルトニウム燃料センターでは、MOX燃料製造コスト低減を目的として、製造プロセスの簡素化(以下、ショートプロセス)に関する技術開発を実施している。本プロセスは、硝酸ウラニル溶液及び硝酸プルトニウム溶液の混合段階でPu富化度を調整し、混合溶液のマイクロ波加熱脱硝及び焙焼還元処理を行って得られた原料粉末(以下、Pu富化度調整粉末)をそのまま成型及び焼結を行い、ペレットを製造するものである。本試験においては、ピーカースケールで調整したPu富化度調整粉末を高温焙焼法及び転動造粒法で造粒処理した後、成型金型壁面に潤滑剤を塗布するダイ潤滑法によって成型、さらに焼結試験を実施し、ショートプロセスによるペレット製造の可能性を確認した。その結果、転動造粒法では、流動性指数向上及び焼結密度の上昇をともに達成できる粉末調整及びペレット製造が可能であり、ショートプロセスによるペレット製造の見通しを得た。

*In the Plutonium Fuel Center, a study on the simplified MOX fuel fabrication process called the "Short Process," was conducted to decrease the fabrication cost of MOX fuel. In this "Short Process," the plutonium content is adjusted in the mixing step of plutonium nitric acid and uranium nitric acid, Pu/U mixed nitric acid is converted using the microwave heating denitration method and denitrated MOX is calcined and reduced. Obtained MOX powder is pelletized into green pellets without additives, and green pellets are sintered. Two types of granulation method were evaluated in the small-scale study: One is the calcination method and reduction method at high temperature and the other is the tumbling granulation method. By tumbling granulation, the powder was improved in a fluid index and the sintering density increased. Therefore, the "Short Process" is feasible for the fabrication of highly qualified fuel pellets.*

## キーワード

ショートプロセス, マイクロ波加熱脱硝法, Pu富化度調整, ダイ潤滑法, 添加剤無添加, 直接成型, 高温焙焼法, 転動造粒法

*Short Process, Microwave Heating Denitration Method, Plutonium Content Control, Die Lubrication, Direct-Pelletize, No-Additive Calcination and Reduction Method at High Temperature, Tumbling Granulation Method*



牧野 崇義

技術開発室 簡素化プロセスチーム所属  
MOX燃料製造技術開発にかかわる業務に従事



武内健太郎

技術開発室 簡素化プロセスチーム所属  
MOX燃料製造技術開発にかかわる業務に従事



加藤 明文

技術開発室 簡素化プロセスチーム所属  
MOX燃料製造技術開発にかかわる業務に従事



大代 操

技術開発室 簡素化プロセスチームリーダー  
MOX燃料製造技術開発にかかわる業務に従事



遠藤 秀男

技術開発室長  
MOX燃料製造技術開発にかかわる業務に従事

1. はじめに

MOX燃料製造技術においては、比放射能が高く、エネルギーの高い線を放出するプルトニウムを取扱うために、ウラン燃料製造技術にはない技術や設備が求められ、これらが燃料加工コストの大幅なコストアップの要因となっている。MOX燃料製造コストの低減は、従来から行ってきた技術開発の延長上では限界があるため、経済性を革新的に向上し得る新たな燃料製造プロセスの検討を行った。その結果、サイクル機構が独自に開発を行ったプルトニウム・ウラン混合転換技術を活用し、溶液段階で燃料仕様に合うようプルトニウムとウランの混合比を調整した上でMOX粉末への混合転換を行い、この混合転換粉（以下、「MH粉末」という）を直接成型し、焼結を行うショートプロセスを開発することにした。これにより、MOX燃料ペレット製造工程の工程数を現在の23工程から8工程へ削減可能であるため、ショートプロセス技術をベースにFBR燃料製造用の実用化プラントを建設することにより大幅な燃料製造コスト低減が期待できるとの結論を得た。ショートプロセス開発計画については、1999年よりショートプロセスを実現する上でポイントとなる4つの

技術開発課題について基礎試験を行い、技術的成立性の評価を行うこととした。

ショートプロセス技術の開発においては、図1に示すように23工程ある現行のMOX燃料ペレット製造工程を8工程にまで大幅に簡素化するために、1999年度から2002年度までの期間を基礎試験期間と位置づけ、要素技術開発を進めている。なお、2003年5月現在、本基本開発は研究開発課題評価委員会のC&Rを受けているところであり、小規模試験に移行することが了承されている。

2. 基礎試験の目的と開発項目の概要

1999年から4年計画で実施している基礎試験の主な目標は、ショートプロセスを実現する上でポイントとなる以下の4つの技術開発課題に関して、実験室規模の試験を行うことによって、技術的成立性を確認することである。

2.1 プルトニウム富化度調整技術開発

現状のプロセスでは、所定のプルトニウム富化度調整は、MH粉末及びウラン粉末等の重量測定により行っている。このプルトニウム富化度調整を、混合転換前の溶液段階で実施するため、硝酸

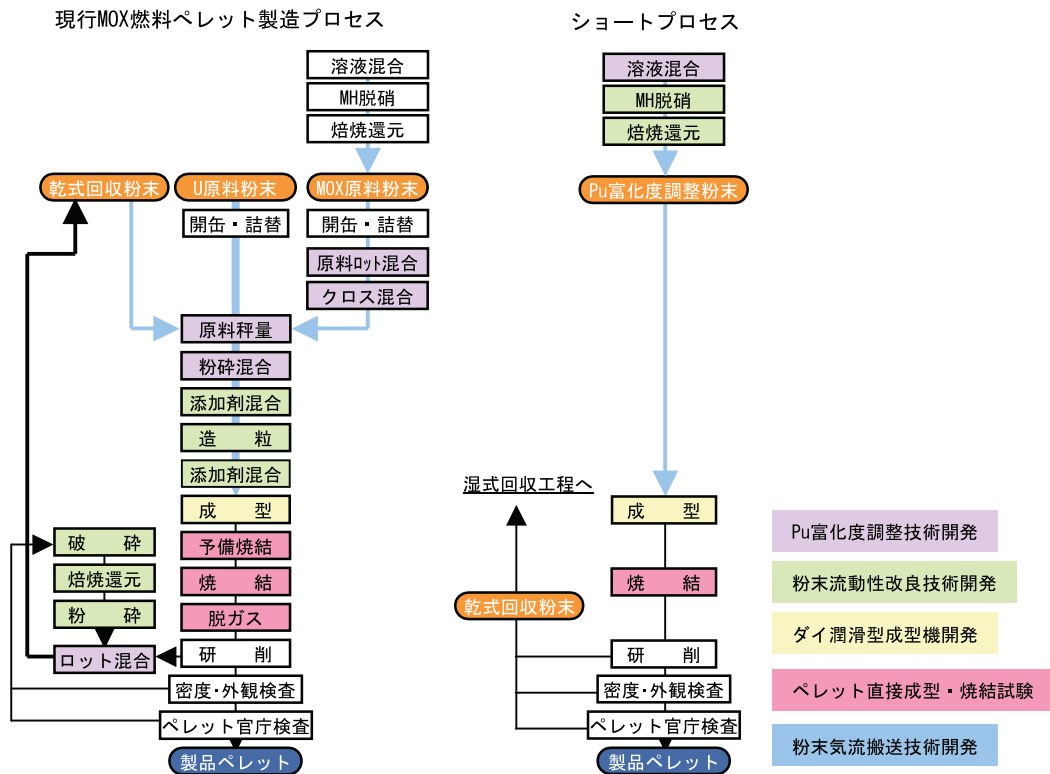


図1 MOX燃料製造フローの比較

プルトニウム溶液及び硝酸ウラニル溶液の定量混合技術を開発し、燃料仕様上要求される精度でプルトニウム及びウランの硝酸溶液を調整可能であることを確認する。さらに、従来のMH粉末と同様の条件で転換可能であることや製造したペレット中にプルトニウムスポットの偏析がないことを確認する。

## 2.2 粉末流動性の改良（焼結挙動把握を含む）

現状のMH粉末は、粉末の流動性が悪く、FBR燃料ペレット成型用の金型へ直接充てんすることは困難である。そこで、FBR燃料ペレット成型用の金型に直接充てん可能な流動性を持つ粉末へとMH粉末の流動性を改良できる造粒法を確認する。また、プルトニウム富化度調整済のMH粉末を用いて焼結試験を行い、ペレットの焼結特性や品質が現在の燃料仕様を満足できることを確認する。

## 2.3 ダイ潤滑型成型機開発

現状のプロセスにおいて、添加剤（潤滑剤）により、ペレット成型時に金型壁面と粉末が滑り、スムーズに成型されるよう、MOX粉末と添加剤と一緒に混合する工程がある。一方、ショートプロセスでは、この添加剤混合工程を削除するために、プルトニウム富化度調整済みのMH粉末を直接金型に充てんし、ペレットに成型する方法を開発、導入する計画である。成型機の金型内面のみ潤滑剤を塗布する機構（ダイ（金型）潤滑機構）は、初めに、国内外の他業種を含めた技術的な調査を行い、試作機を製作する。次のステップは、その試作機による模擬粉末を用いた成型試験を行い、成型体の健全性を確認する。さらにグローブボックス作業による保守性等を考慮してダイ潤滑方式を選定する。また、選択したダイ潤滑機構を試作し、既存の試験用成型機に組み込み、模擬粉末による成型性能の確認及び保守性の確認等を行う。

これらの性能確認試験結果を踏まえて、技術的成立性を確認し、ダイ潤滑型成型機的设计検討を行う。

## 2.4 粉末気流搬送技術開発

現状のプロセスでは、MOX粉末を収納した専用の搬送容器が、設備間を移動しており、この粉末搬送容器の保管及び設備間の搬送のために、グロー

ブボックス内スペースの大きな部分を占有している。ショートプロセスでは、この粉末搬送の保管スペースや搬送スペースを合理化し、燃料製造プラントのコンパクト化を図る計画である。そのため、粉末の設備間の直接搬送を可能とする粉末気流搬送技術について、模擬粉末を用いた試験を行い、MOX粉末の気流搬送の技術的成立性を確認する。

本報告では上記4つの開発項目のうち、プルトニウム富化度調整技術開発及び粉末流動性の改良を含むペレット直接成型・焼結試験についてこれまでに得られた結果を紹介する。

## 3. ペレット直接成型・焼結試験

### 3.1 試験内容

本試験では、リファレンス粉末「高温焙焼法」による粉末及び「転動造粒法」による粉末を用いて、2種類の造粒法による粉末と現行法による粉末との粉末特性及び焼結特性の違いを確認する。

ペレット直接成型・焼結試験のフローと試験条件を図2に示す。

#### (1) 試験粉末

本試験で使用したMOX粉末の調整条件を以下に示す。

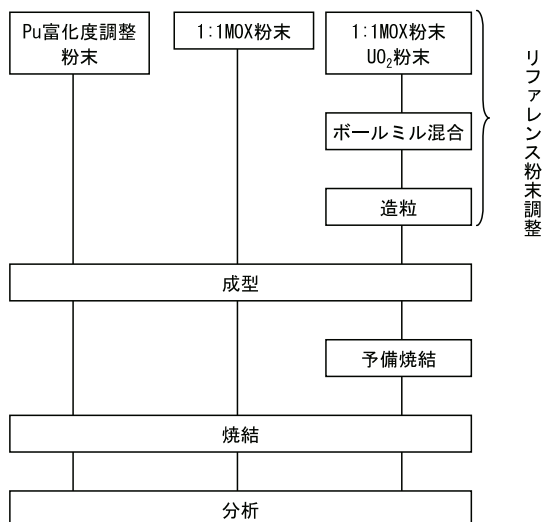
##### 1) Pu富化度調整粉末

試験試料は、転換技術課にて溶液段階でプルトニウム富化度（Pu/Pu + U）を30%に調整し、マイクロ波加熱脱硝及び焙焼還元処理を行った粉末（以下、30% Pu富化度調整粉末と呼ぶ）を使用した。なお、Pu富化度調整粉末の流動性を向上させるために、「高温焙焼法」及び「転動造粒法」の2つの方法を採用した。

通常、30%Pu富化度調整粉末は、脱硝後に、ボールミルによる機械解砕を行った後、750 での焙焼還元処理を行った粉末である。「高温焙焼法」による粉末は、焙焼還元温度をパラメータにし、950、1,050、1,100、1,150 の4点処理した粉末である。また、「転動造粒法」による粉末は、750での焙焼還元処理後に、転動造粒処理を行った粉末である。

##### 2) リファレンス粉末及び1:1 MOX粉末

現工程でのペレット製造で使用している粉末を模擬するため、1:1 MOX粉末をADU UO<sub>2</sub>粉末でPu富化度30%に調整後、ボールミル混合造粒、解砕及び分級処理した粉末（以下、リファレンス



(a) 試験フロー

工程	処理条件
ボールミル混合	1リットル, 99rpm×6hr, Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> φ10mm ボール装荷量: ポット容積の約35% 粉末装荷量: ポット容積の約40% 混合後, ステアリン酸亜鉛を約0.3wt%手混合
造粒	約1ton/cm <sup>2</sup> , φ10mm, 250 μm ~ 850 μm 分級後, ステアリン酸亜鉛を約0.2wt%手混合
成型	ダイス径: φ10mm φ7.2mm (1:1MOX粉末のみ) 充てん深さ: 20mm (1:1MOX粉末のみ) 24mm
予備焼結	800°C×2.5hr, 200°C/hr Ar-5%H <sub>2</sub> 混合ガス
焼結	1,700°C×2hr, 400°C/hr Ar-5%H <sub>2</sub> 混合ガス

(b) 試験条件

図2 ペレット直接成型・焼結試験フローと試験条件

粉末と呼ぶ)及び現行のMOX燃料製造で使用する1:1 MOX粉末を使用した。

(2) 試験方法

本試験で実施した試験方法を以下に示す。

1) ペレット直接成型試験

粉末のダイスへの充てんは、粉末をシェーカー(粉末を自動充てんする装置)を模擬した方法で手動にて行った後、ダイスの穴から溢れた粉末をへらで摺り切って行った。

また、ショートプロセスは、添加剤無添加で原料粉末を直接ペレットに成型することが基本であるため、ダイ潤滑方式を採用する予定である。したがって、本試験はダイ潤滑法を模擬するため、ステアリン酸亜鉛をダイス内壁及びパンチ端面に綿棒で塗布した。

2) 予備焼結

予備焼結は、バインダー及びブルプリカントとして添加したステアリン酸亜鉛の除去を目的とするため、リファレンス粉末のみ実施した。

3) 焼結

焼結条件は、現行プロセスと同様に、95%Ar 5% H<sub>2</sub>ガス雰囲気中、1,700 × 2 hrとした。

(3) 分析項目

本試験で実施した分析項目は、以下のとおりである。

1) 粉末物性及びSEM観察

- ・バルク密度(物質の質量をかさ容積で除した数値)、タップ密度(物質の質量をタッピング後の容積で除した数値)及び流動性指数(安息角、圧縮度、スパチュラ角及び均一度凝集度から算出した指数の合計値)
- ・比表面積
- ・SEM観察(粒子形状、大きさ)

2) ペレット物性及び観察

- ・成型体及び焼結体の外観、寸法、密度
- ・ペレット金相観察(結晶粒径、ポアの大きさ分布等の微細構造)
- ・オートラジオグラフィ観察(Pu, Uの均一性)
- ・ペレット収縮特性(焼結特性)

(4) 評価項目

本試験は、以下の3項目を目標とする。

- ・粉末の流動性指数は、金型への充てんがスムーズに行える60以上であること。(粉末流動性改良試験の一環として実施した充てん性確認試験より、充てん率がほぼ100%になるのは流動性指数60以上の粉末であった。)
- ・焼結密度は、95%TD以上であること。
- ・微細構造、Pu均一性は、現行プロセスと同等以上であること。

3.2 試験結果

(1) 高温焙焼法によるPu富化度調整粉末

1) 粉末の特性評価

本試験で使用したPu富化度調整粉末の特性を評価した。粉末物性の測定結果を表1に示す。

a) バルク・タップ密度

Pu富化度調整粉末(750)のバルク・タップ密度は、リファレンス粉末及び1:1 MOX粉末と比較するとそれぞれ小さな値となった。また、そのバルク・タップ密度は、焙焼還元温度の上昇

表1 「高温焙焼法」による試験粉末の粉末物性

試験粉末	バルク密度 (g/cm <sup>3</sup> )	タップ密度 (g/cm <sup>3</sup> )	圧縮度 (%)	流動性指数	比表面積 (m <sup>2</sup> /g)	
Pu 富化度調整粉末	750	1.4	2.4	42	21	6.7
	950	1.8	3.0	40	21	1.1
	1,050	1.9	3.3	42	21	0.6
	1,100	1.9	3.2	41	21	0.5
	1,150	2.8	4.4	36	26	0.4
リファレンス粉末	3.4	3.8	11	-	4.2	
1 : 1 MOX 粉末	2.1	3.0	30	27	5.2	

に伴い、増加する傾向を示した。

#### b) 流動性指数

Pu 富化度調整粉末の流動性指数は、目標値である60を下回り、焙焼・還元温度にほとんど依存しないことが確認された。

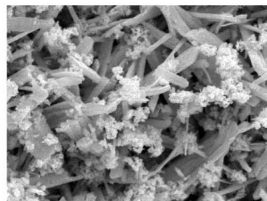
#### c) 比表面積

Pu 富化度調整粉末の比表面積は、焙焼還元温度が上昇するにつれ、減少する傾向が見られた。この傾向は、加藤らが報告している結果と一致している<sup>2)</sup>。

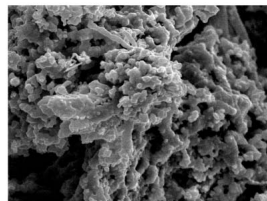
#### d) SEM 観察

「高温焙焼法」による粉末のSEM 観察結果を写真1に示す。

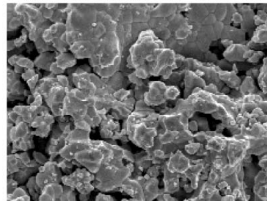
Pu 富化度調整粉末には100 μm 以上の大きさの



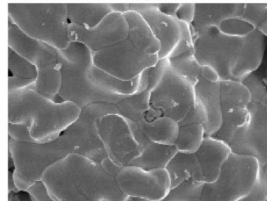
Pu 富化度調整粉末 (750°C)



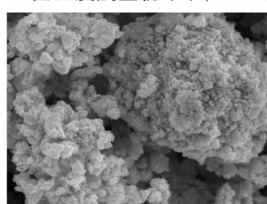
Pu 富化度調整粉末 (950°C)



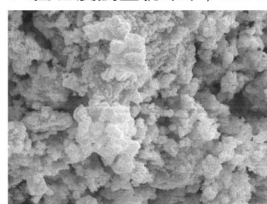
Pu 富化度調整粉末 (1,050°C)



Pu 富化度調整粉末 (1,150°C)



リファレンス粉末



1:1MOX粉末 1 μm

写真1 「高温焙焼法」によるPu 富化度調整粉末のSEM 写真

凝集粒子が含まれていること及び一次粒子（最大倍率での観察において形状や大きさが識別可能な最小の粒子）の大きさが数 μm 程度であることが観察された。また、Pu 富化度調整粉末の一次粒子は、焙焼還元温度が上昇するにつれ大きくなっており、粒成長が進行していることが観察された。

リファレンス粉末及び1 : 1 MOX 粉末の凝集粒子は、Pu 富化度調整粉末の場合よりも小さいサブミクロンオーダーの一次粒子によって構成されていた。

#### 2) ペレット直接成型の評価

ダイ潤滑法を模擬したペレット直接成型・焼結により製造されたペレットについて評価した。

##### a) 成型体の健全性

本試験で得られた全ての成型体の表面には、キャッピングやラミネーションの発生は確認されず、健全なペレットであった。

##### b) 焼結体の健全性

本試験で得られた焼結体の表面には、大きな割れ、欠け、焼き膨れあるいはマイクロクラック等が確認されず、現行プロセスで得られるペレットと同等の健全なペレットであった。

#### 3) ペレット品質の評価

本試験で得られたペレットの品質が現行の燃料製造仕様を満足しているかを評価した。リファレンス粉末のオートラジオグラフィ観察結果を写真2、金相観察結果を写真3に示す。

##### a) ペレット寸法及び密度

本試験で得られたペレットの成型体及び焼結体の寸法及び密度を表2及び図3に示す。

Pu 富化度調整ペレットの焼結体密度は、91.2% TD から95.9% TD の範囲で、粉末の焙焼還元温度の上昇に伴って、減少する傾向にあった。目標値95%TD 以上を満足するものは、焙焼・還元温度950 以下であった。

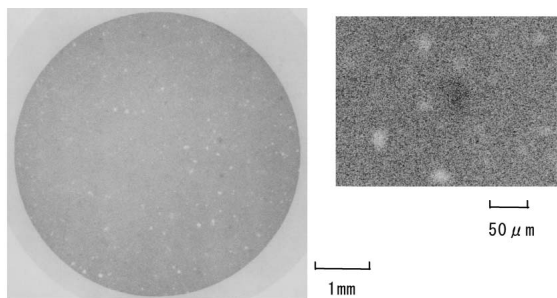


写真2 オートラジオグラフィーリファレンス粉末

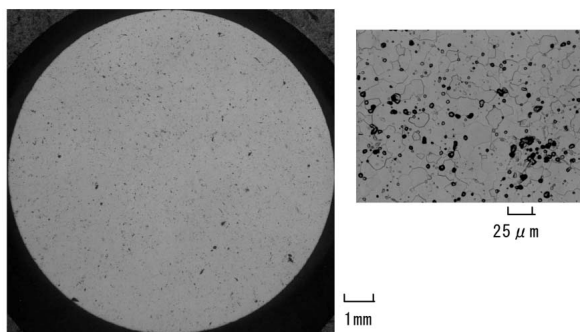


写真3 金相 - リファレンス粉末

また、充てん深さ24mmで成型を実施した結果、Pu富化度調整ペレットの成型体高さは、リファレンスペレットと比較すると、12.96mmから4.66~8.62mm程度に低下し、焙焼・還元温度を高くすると高くなる傾向にあった。

b) Pu均一性

得られたペレットのPu均一性を確認するために、ペレットのオートラジオグラフィ観察を実施した。観察結果の一例を写真4に示す。その結果、Pu富化度調整ペレットのPu均一性は現行プロセスで得られるペレットと同等であることを確認した。

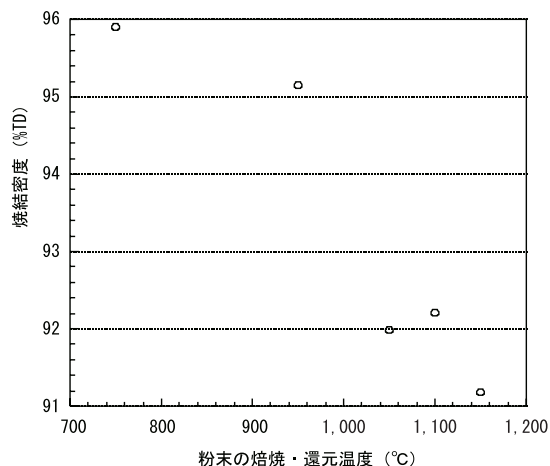


図3 高温焙焼法によるPu富化度調整粉末を用いたペレットの焼結密度

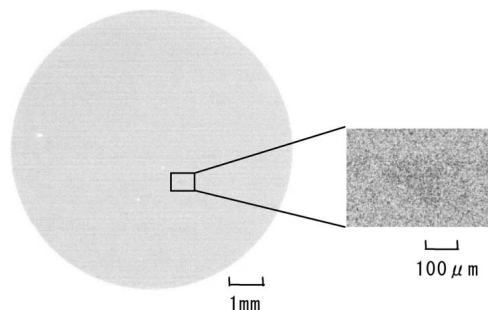


写真4 オートラジオグラフィー Pu富化度調整粉末 (750)

c) 微細構造の観察

得られたペレットの金相観察を実施した。観察結果の一例を写真5に示す。

結晶粒径は、いずれのペレットにおいても大きな差は見られなかった。また、ポアの偏在した部分は観察されず、健全な金相データを示していた。その結果、Pu富化度調整ペレットの微細構造は現行プロセスで得られるペレットと同等であること

表2 「高温焙焼法」による試験粉末の成型体及び焼結体の寸法及び密度

理論密度：11.104 g/cm<sup>3</sup>(Pu富化度調整ペレット、リファレンスペレット)  
理論密度：11.200 g/cm<sup>3</sup>(1:1 MOXペレット)

試験粉末	充てん深さ (mm)	成型体直径 (mm)	成型体高さ (mm)	成型体重量 (g)	成型体密度 (%TD)	焼結体高さ (mm)	焼結体密度 (%TD)	
Pu富化度調整粉末	750	24	10.12	4.66	2.11	50.62	3.78	95.86
	950	24	10.11	4.84	2.39	55.43	4.06	95.12
	1,050	24	10.14	7.52	3.83	56.85	6.45	91.99
	1,100	24	10.12	7.51	3.89	57.96	6.50	92.21
	1,150	24	10.11	8.62	4.78	62.13	7.65	91.18
リファレンス粉末	24	10.12	12.96	6.42	55.45	10.94	93.80	
1:1 MOX粉末	20	7.28	6.22	1.59	54.72	5.07	96.67	

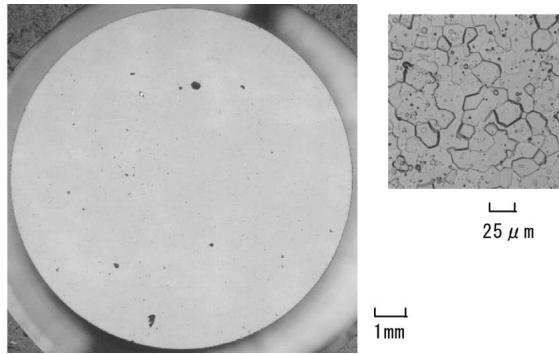


写真5 金相 - Pu富化度調整粉末 (750 )

を確認した。

#### d) ペレット収縮特性

各粉末から得たペレットの収縮特性の測定結果を図4に示す。

Pu富化度調整粉末については,粉末の焙焼還元温度の上昇(750 1,150)に伴ってペレットの収縮開始温度が高温側にシフト(850 1,250)しており,すなわち収縮開始が遅くなる傾向を示した。また,ペレットの最大収縮速度を示す温度についても粉末の焙焼還元温度の上昇に伴って高温側にシフトした。以上により,粉末の熱処理温度がペレットの焼結特性に大きく影響することを確認した。

また,750で脱硝体の焙焼還元処理を行っている1:1 MOX粉末については,750で焙焼還元処理を行ったPu富化度調整粉末と同様の収縮特性曲線を示した。

一方,リファレンス粉末については,収縮開始温度が1,100と高く,1,550程度でペレットの収縮が飽和するという結果となった。また,ペレットの最大収縮速度を示す温度については,750で焙焼還元処理を行ったPu富化度調整粉末と同様であった。

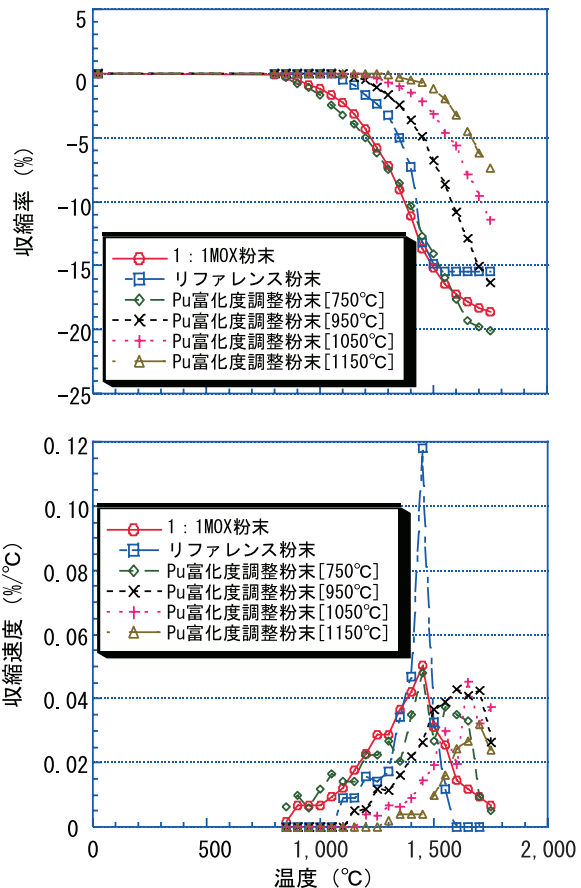


図4 高温焙焼法によるPu富化度調整粉末を用いたペレットの収縮率及び収縮速度

## (2) 転動造粒法によるPu富化度調整粉末

### 1) 粉末の特性評価

本試験で使用したPu富化度調整粉末の特性を評価した。粉末物性の測定結果を表3に示す。

#### a) バルク・タップ密度

バルク・タップ密度は,転動造粒することにより,大きな値となった。

#### b) 流動性指数

転動造粒したPu富化度調整粉末の流動性指数は,目標値60以上となり,実際に粉末を取り扱っ

表3 「転動造粒法」による試験粉末の粉末物性

試験粉末		バルク密度 (g/cm <sup>3</sup> )	タップ密度 (g/cm <sup>3</sup> )	圧縮度 (%)	流動性指数	比表面積 (m <sup>2</sup> /g)
Pu富化度調整粉末	750	1.4	2.4	42	21	6.7
	750 (造粒有)	2.6	3.5	26	72	5.6
リファレンス粉末		3.4	3.8	11	-	4.2
1:1MOX粉末		2.1	3.0	30	27	5.2

た感触からも、流れの良い粉末であった。

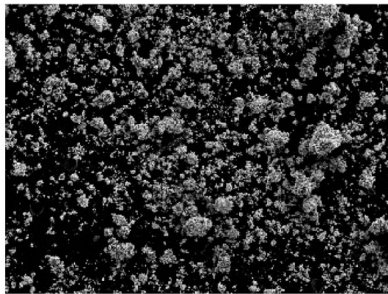
### c) SEM 観察

粉末のSEM 観察結果を写真6に示す。

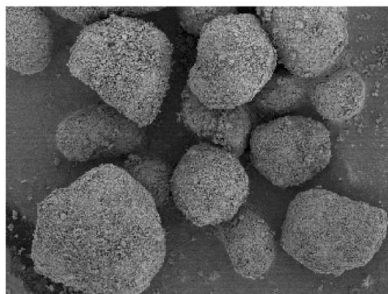
転動造粒したPu富化度調整粉末には100 $\mu$ m以上の大きさの凝集粒子を含んでいること及び一次粒子の大きさが数 $\mu$ m程度であることが観察された。また、一次粒子の径及び形状は、転動造粒しないPu富化度調整粉末との大きな差は見られなかった。

### 2) ペレット直接成型の評価

ダイ潤滑法を模擬したペレット直接成型・焼結により製造されたペレットについて評価した。



Pu富化度調整粉末 (750°C)



Pu富化度調整粉末 (750°C) [造粒]

写真6 「転動造粒法」によるPu富化度調整粉末のSEM写真

### a) 成型体の健全性

本試験で得られた成型体の表面にはキャッピングやラミネーションは発生せず、健全なペレットであった。

### b) 焼結体の健全性

本試験で得られた焼結体の表面には大きな割れ、欠け、焼き膨れ、マイクロクラック等は発生せず、現行プロセスで得られるペレットと同等の健全なペレットを得ることができた。

### 3) ペレット品質の評価

本試験で得られたペレットの品質が現行の燃料製造仕様を満足しているかを評価した。

#### a) ペレット寸法及び密度

本試験で得られたペレットの成型体及び焼結体の寸法及び密度を表4及び図5に示す。

転動造粒したPu富化度調整ペレットの焼結体密度は、95.2%TDであった。これは、目標値95%TD以上を満足する値であった。

また、ペレットの高さは、リファレンスペレットの高さまでには達しなかったものの、造粒前と

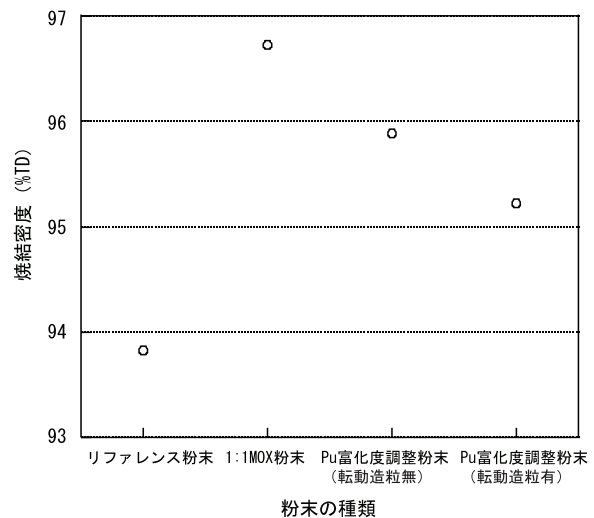


図5 転動造粒法によるPu富化度調整粉末を用いたペレットの焼結密度

表4 「転動造粒法」による試験粉末の成型体及び焼結体の寸法及び密度

理論密度：11.104g/cm<sup>3</sup> (Pu富化度調整ペレット、リファレンスペレット)

理論密度：11.200g/cm<sup>3</sup> (1:1MOXペレット)

試験粉末		充てん深さ (mm)	成型体直径 (mm)	成型体高さ (mm)	成型体重量 (g)	成型体密度 (%TD)	焼結体高さ (mm)	焼結体密度 (%TD)
Pu富化度調整粉末	750	24	10.12	4.66	2.11	50.62	3.78	95.86
	750 (造粒有)	24	10.10	10.58	4.64	49.36	8.58	95.19
リファレンス粉末		24	10.12	12.96	6.42	55.45	10.94	93.80
1:1MOX粉末		20	7.28	6.22	1.59	54.72	5.07	96.67

比較すると約2倍以上となった。

#### b) Pu 均一性

得られたペレットのPu 均一性を確認するために、ペレットのオートラジオグラフィ観察を実施した。観察結果を写真7に示す。

ペレットのオートラジオグラフィにはPu スポット及びUスポットが見られなかった。その結果、Pu 富化度調整ペレットのPu 均一性は現行プロセスで得られるペレットと同等であることを確認した。

#### c) 微細構造の観察

得られたペレットの金相観察を実施した。観察結果を写真8に示す。

結晶粒径については、大きな差は見られなかった。また、ポアの分布についても偏在部分は見られなかった。その結果、Pu 富化度調整ペレットの微細構造は現行プロセスで得られるペレットと同等であることを確認した。

#### d) ペレット収縮特性

各粉末から得たペレットの収縮特性の測定結果を図6に示す。

転動造粒法によるPu 富化度調整粉末について

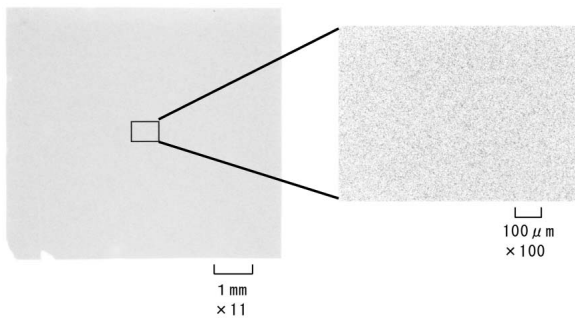


写真7 オートラジオグラフィ - Pu 富化度調整粉末 (750) [造粒]

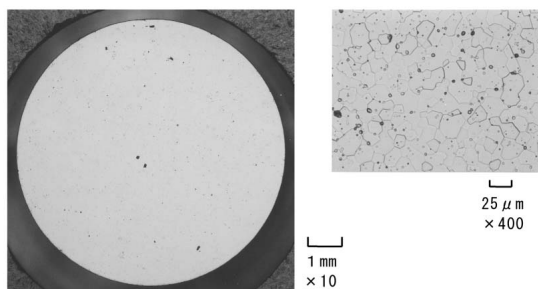


写真8 金相 - Pu 富化度調整粉末 (750) [造粒]

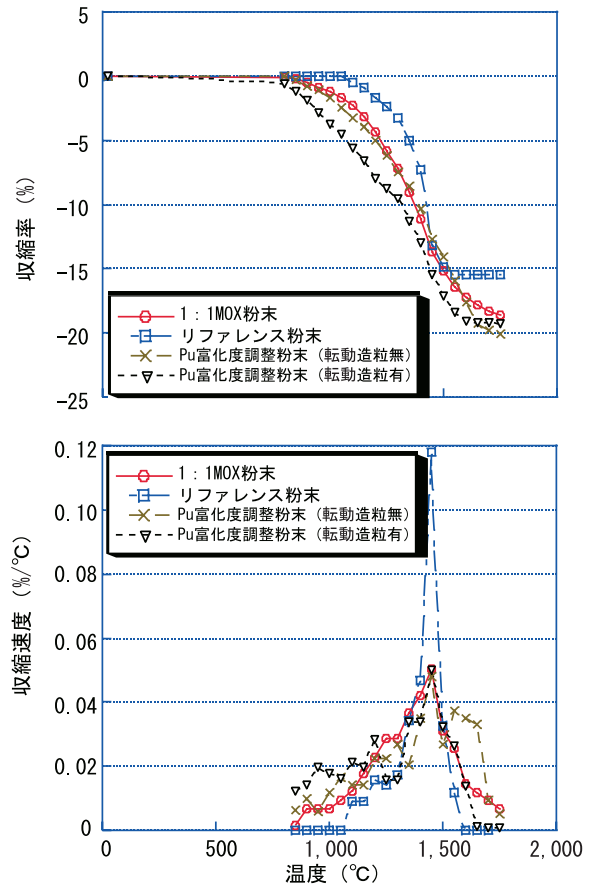


図6 転動造粒法によるPu 富化度調整粉末を用いたペレットの収縮率及び収縮速度

は、測定開始温度である800 で既に収縮が開始しており、1,600 でほぼ終了した。

また、ペレットの最大収縮速度を示す温度は、約1,450 であり、転動造粒しないPu 富化度調整粉末、リファレンス及び1:1 MOX 粉末と同様であった。その結果、転動造粒処理がペレットの焼結特性にほとんど影響しないことを確認した。

### 3.3 考察

#### (1) ペレット高さについて

バルク密度の低い粉末を成型機ダイスに充てんした場合、バルク密度の高い粉末と比較すると充てん量が少なく、空隙の多い「疎」な充てん状態となる。このことは、加圧成型を行う際の粉末の潰ししろが大きいことを意味しており、成型体の高さが低下することになる。したがって、バルク密度が小さいPu 富化度調整粉末については、ペレットの高さが低下する結果となった。

バルク密度の大きい造粒粉末では、ペレット高

さは、約2倍以上となり、ペレットを取扱時に必要とする高さを上回った。したがって、ペレット高さの課題は造粒することで解決できる見通しである。

## (2) ペレット密度について

焙焼還元法で得られたペレットの焼結密度は、焙焼還元温度950 までは、目標である焼結密度95%TDに達し、焙焼還元温度の上昇に伴い減少する傾向にあった。この現象は、粉末の熱処理温度の上昇によって粉末の活性度が低下したこと及び一次粒子のネック成長によって粒子が硬くなり、成型体内に残った空隙が焼結時に抜けきらなかったことによるものと推定される。

今回の転動造粒法による粉末は、焙焼還元温度750 で処理した粉末を転動造粒したものである。もともとの焙焼還元温度750 で処理した粉末のペレット焼結密度は約96%TDであった。今回採用した転動造粒は、粉末に水を含ませ羽根の回転力により造粒を行う方法であり、粉末に熱を加える方法ではないため、粉末の焼結特性に影響を与えるものではないと考えられる。このことは、収縮特性の結果からも推察される。よって、焙焼還元温度750 で処理した粉末と同様の焼結特性を示し、転動造粒粉末のペレット焼結密度は95.2%TDとなったものと思われる。

## 4. おわりに

「転換施設でのPu富化度調整とMOX施設でのペレット直接成型」を基本とするショートプロセス技術を成立させるための開発の一環として、ダイ潤滑法を模擬したペレット直接成型・焼結試験を実施した。

「高温焙焼法」によるPu富化度調整粉末については流動性及びペレット焼結密度の測定結果から、95%TD以上の焼結密度目標値達成に必要な粉

末特性を得ることが困難であることが分かった。

一方、「転動造粒法」については、燃料製造施設側では乾式のプロセスを基本とするため、従来、水分の調整を必要とする転動造粒の適用は困難であったが、再処理施設側では湿式プロセスを基本とするため、転動造粒法を採用し、「転動造粒法」による試験を実施した。このPu富化度調整粉末を用いて流動性の測定及びペレットの製造試験を実施した結果、粉末の流動性が良好であること及びペレット品質(プルトニウム均一性、結晶粒径等)などが現行プロセスで得られるペレットと同様であることが確認できた。

以上の結果、焼結密度の上昇及び流動性の向上の観点から、転動造粒法は、ショートプロセスに適しているものと考えられる。

研究開発課題評価委員会におけるC&Rの結果を踏まえて、これら基礎試験で抽出された課題については、次ステップのショートプロセス開発として進めていく。具体的には、製品粉末として粒径の最適化及びその造粒条件を把握する試験及びその造粒粉末を使用したペレット直接成型・焼結試験が必要である。

今後の開発は、ダイ潤滑型成型機を組み込んだペレット製造のシステム化を行い、基礎試験では確認できなかった製造システムの機能・性能の確認、安定した製品品質及び製品収率を得るための最適な粉末調整及びペレット製造条件の確立を図る。

## 参考文献

- 1) 山口俊弘, 大代操, 他: “ショートプロセス技術開発計画 基礎試験実施計画書”, JNC TN8410 99 011, (1999)
- 2) 加藤良幸, 加藤輝夫, 他: “マイクロ波加熱脱硝法 基礎試験( )~ MOXの高温短時間焙焼・還元試験~”, PNC PN8410 96 222, (1996)