3. 溝型ロールによるウランの圧延加工について

川崎正之*, 武谷清昭, 佐々木吉方, 山本達郎

On the Rolling of Uranium Rods by Grooved Rolls

By M. KAWASAKI, K. TAKETANI, Y. SASAKI and T. YAMAMOTO

Some basic studies on the rolling of uranium rods were carried out as a part of preliminary study for the fabrication of natural uranium fuel rod to be used for JRR-3.

Two different sequences of groove were adopted; one was the ordinary "Oval-square", and the other was the "Gothic". Because of the underfilled deformation of uranium in the oval groove even at 600°C and some operational difficulties, the former sequence seemed to be impractical. On the other hand, the latter sequence was almost satisfactory.

The microstructural changes of uranium rod hot rolled at 600° and 500°C, respectively were also investigated. At 600°C, the recrystallized structure was formed with less rolling reduction than at 500°C, but the size of recrystallized grains after final reduction of 81% in area was finer at 500° than at 600°C.

Furthermore, the effects of increasing reduction on hardness of uranium rod at 300° and 600°C as well as on the appearance of uranium rod after final reduction of 45% in area at 300° and 600°C were compared in the respective cases.

Finally, the dilatation curves of uranium rods for various rolling temperature and degree of reduction as well as its deformation on thermal cycling between 50° and 550°C were discussed.

緒 言

この研究は国産第1号原子炉燃料要素の天然ウラン棒製造加工に関して行なった実験の一部である。棒状ウランの製造加工方法には鋳造、鍛造、押出、圧延など種々あるが、われわれは溝型ロールによる圧延加工について基礎的ならびに試作的研究を進めている。

ウラン棒の圧延加工に関し、加工性ならびに冶金学的取扱については初めての経験であるので、燃料棒実体の製造加工に先行して、比較的小型の圧延機により種々検討を行なった。まず問題になるのは、圧延ロールの溝型の設計であるが、溝型の異なる系列のロールを試作して、ウラン圧延にはどのような形状のものがよいかを検討し、次いで圧延による棒の顕微鏡組織の変化および種々性質の変化について条件を変え検討を行なった。

ここでは主として、製造加工に関係した結果についてのみ総括的に述べ、ウラン圧延棒の性質の詳細については別に発表する予定である。

I. 研究方法

使用した圧延機** は2段の溝型ロール(胴長20", 径10")をそなえ、廻転数32 r.p.m., 30HPのもので、溝型の系列を次のA, B 2種の方法に変えて圧延を行なった。いずれの場合も素材としてはフランスから輸入したカルシウム還元法によるウラン地金を真空中でアルミナ坩堝を使用して高周波融解し、1"φのグرافァイト鑄型に鋳造したものを、表面を切削して23mmφにして使用した。

圧延に際して、ウランは酸化性が著しく、かつ酸化したものが微細な dust になって空気中に浮遊し、人体に毒性をもたらすため、油または溶融塩を被覆しながら行なったが、300°C以下の圧延の場合にはシリコン油を、500°C以上の圧延の場合には $\text{LiCO}_3\text{—K}_2\text{CO}_3\text{—CaCO}_3$ 系の塩浴を用いて行なった。

1. Square-Oval 系列

* 日本原子力研究所 原子力工学部金属研究室
(Japan Atomic Energy Res. Inst., Div. of Nuclear Eng., Metallurgy Group)

** 大谷重工業製

23 mmφ の素材を圧延に先立ち 600℃ で 1 時間加熱後、Square-oval pass で断面積が 140mm² になるまで 600℃ で熱間粗圧延を行ない、その後 1:1 の硝酸水溶液で酸洗を行なってから、600°および 300℃ で 10 および 5 mmφ の棒に仕上げた。溝型ロールのデータを Table 1 に、また Fig. 1 の(a)に溝型を示すが、溝型の設計に当っては軟鋼に使用されているものを参考にした。この系列では後述するように、Oval 溝での材料

Table 1. Data on grooved roll (A)

Pass No.	Shape of groove	Dimension (mm)			Area of rod (mm ²)	Reduction per pass (%)	Total reduction (%)
		H	L	S			
R 1*	Square	-	-	21.5	405	-	-
2	"	-	-	20.2	395	2.4	2.4
3	"	-	-	19.1	345	12.7	14.8
4	"	-	-	18.3	313	9.3	22.6
5	"	-	-	17.1	271	13.4	33.1
6	"	-	-	16.1	240	11.4	40.7
7	"	-	-	15.1	215	10.4	46.3
8	"	-	-	14.2	190	11.6	53.1
9	"	-	-	13.5	172	9.1	57.5
10	"	-	-	12.8	159	7.6	60.9
11	"	-	-	12.4	140	11.9	65.7
F 1**	Oval	9.6	19.2	-	110	21.4	21.4
2	Square	-	-	10.9	99	10.0	29.3
3	Oval	9.0	6.5	-	92	9.1	34.3
4	Round	-	10φ	-	77	16.4	45.0
5	Oval	7	14	-	62	10.8	55.7
6	Square	-	-	7.4	55	11.3	60.7
7	Oval	5.8	12	-	46	16.4	67.1
8	Square	-	-	6.2	41	10.9	70.7
9	Oval	4.8	10	-	33	19.5	76.4
10	Square	-	-	5.2	30	9.1	78.5
11	Oval	4.1	8.4	-	26	13.3	81.4
12	Square	-	-	4.7	24	7.7	82.8
13	Oval	4.2	6.8	-	20	16.7	85.7
14	Round	-	5φ	-	17	15.0	87.8

* Rough rolling

** Finish rolling

(a) Oval-square

(b) Gothic pass

Fig. 1. Design of grooves used

の横ばりが小さく、ほとんど縦方向にのみ引伸ばされるため、加工度は設計に際して考えたより大きくなり、次の Square 溝での加工度は小さくなった。

2. Gothic 系列

23mmφ の素材を Gothic pass で断面積が約 140mm² になるまで、600℃ で熱間粗圧延を行なってから、600℃ で 1 時間焼ナマシ後酸洗をし、600°および 300℃ で同じく Gothic pass (ただし、最後の 2 個の溝は round) で 10mmφ の棒に仕上げた。Gothic の系列で棒を圧延する場合、棒を各 pass ごとに 90° 回転させて圧延するが、最後の Gothic の溝では同じ溝に棒を 90° 回転させて 2 回通し、次いで Round pass を 4 回行なうことにより丸棒に仕上げるよう設計した。溝型ロールのデータを Table 2 に、また溝型については Fig. 1 の(b)に示す。また上記一連の実験とは別に、この溝型ロールを利用して熱間粗圧延による铸造組織の破壊および結晶粒微細化を検討するため、600°および 500℃ で pass ごとに約 3 分間の再熱を行ない、所定の加工度になるまで圧延し、顕微鏡により組織の観察を行なった。

Table 2. Data on grooved roll (B)

Pass No.	Shape of groove	Dimension (mm)		Area of rod (mm ²)	Reduction per pass (%)	Total reduction (%)
		h	l			
R 1*	Gothic	24	31.9	392	-	-
2	"	23.2	30.6	365	6.9	6.9
3	"	22.0	29.3	331	9.3	15.6
4	"	20.8	27.7	315	4.7	19.6
5	"	20.0	26.6	285	9.5	27.3
6	"	18.6	24.8	240	15.8	38.8
7	"	17.8	23.7	208	13.5	46.9
8	"	16.5	24.8	191	8.2	51.3
9	"	15.7	23.6	158	17.3	59.7
10	"	14.3	21.5	139	12.0	64.5
F 1**	"	13.1	19.7	113	18.7	18.7
2	"	12.1	17.7	95	15.9	32.1
3	"	11.3	16.9	83	12.6	40.0
4	Round	10.2φ	-	79	4.8	43.0
5	"	10.0φ	-	77	1.3	44.4

* Rough rolling

** Finish rolling

II. 結果ならびに考察

1. ロール溝型について

実験に使用した圧延方法は、Square, Square-oval および Gothic pass の 3 種であるが、600℃ での熱間粗圧延に使用した Square および Gothic pass の両者ともに圧延結果は良好であった。

次に仕上り圧延に用いた Square-oval 系列は前述の

ように鋼に使用されているものを参考にして設計したが、ウラン圧延の場合は600°Cおよび300°Cともに Square の材料が Oval 溝に入って圧延される時に横びりが小さく、いわゆる underfilled の著しい状態になり、次の Square 溝に入れる時に圧延中棒が倒れることがしばしば起った。この Oval 溝での材料の横びりの状況はウランの場合、たとえば12mm角のものを Oval 溝に入れると圧延による横びりは1~1.5mm 程度と小さいが、一方、430°C でアルミニウムを同一条件で圧延すると4mm 程度の横びりとかなりの差が見られる。それゆえ Square-oval pass でウランを圧延しようとする場合には、Oval の形状として短軸/長軸 比を大きくとることが必要である。さらに Square-oval pass で起こる難点として、この系列では Oval の材料を正しく Square の溝に導くため、ロール案内を必要とするが、熱間圧延に際してはウランの酸化防止のため熔融塩を被覆しながら行なう必要があるため、棒表面の熔融塩が冷えた案内にふれて凝固し、棒をロール溝に導くことが困難になりやすい。

他方 Gothic pass は Square pass も同様であるが、特別のロール案内を必要とせず、圧延中に棒は self-supporting の状態にある。この系列によってウランのほぼ満足しうる圧延ができることがわかった。この Gothic pass でもウランの横びりはやや小さく、Fig. 2 にその状況を示す。図にはアルミニウムおよび鋼の熱間圧延の場合も併記してある。

Fig. 2 Dimensional change of Gothic passed rods

2. 圧延棒の外観

α -ウランは複雑な結晶構造と著しい異方性のため実験に先立って加工しがいのではないかと考えられ、また圧延温度が低い場合(400°C 以下)および β 相範囲で溝型ロールで棒圧延すると割れが入りやすいことが文献⁽¹⁾にも見られるが、われわれの用いたウランは300°C および600°C でいずれの溝型系列を用いても割れによる大きな欠陥は見出せなかった。しかしこころみに常温で圧延を行なってみると、圧延方向に直角に割れが入り、加工が進むと割れが深くなり圧延不可能であった。また β 相範囲の700°C での圧延も行なったが、この場合は edge-crack が著しくやはり圧延は不可能であった。われわれの実験では300°C および600°C で85%の強加工度を与えて5mm ϕ の棒にしたが、外観では割れは見られなかった。

えられた棒の表面を観察すると、600°C で圧延したものは被覆に使用した熔融塩のため表面が多少粗くなっているが、300°C の圧延棒は割合い平滑であった。この状況を Plate 1 に示す。写真は10mm ϕ の棒である。表面状態を左右するものとして、温度にも勿論よるが、被覆材の選択がかなり影響するのではないと思われる。

(a) Rolled at 300°C

(b) Rolled at 600°C

Plate 1 Appearance of 10mm ϕ uranium rod after final reduction of 45% in area at each temperature

3. 圧延による顕微鏡組織の変化

熱間粗圧延による鑄造組織の破壊、再結晶微細化の

(a) Cast ingot

(b) Reduced 9 %

(c) Reduced 29 %

(d) Reduced 45 %

(e) Reduced 73 %

(f) Reduced 73 % (outer part)

(g) Reduced 79 %

(h) Reduced 81 %

× 25

Polarized light

Plate 2 Microstructural change of hot rolled uranium rod at 500°C

(a) Cast ingot

(b) Reduced 9 %

(c) Reduced 23 %

(d) Reduced 23 % (outer part)

(e) Reduced 37 %

(f) Reduced 54 %

(g) Reduced 76 %

(h) Reduced 81 %

× 25

Polarized light

Plate 3 Microstructural change of hot rolled uranium rod at 600°C

状況を Gothic pass で500°および600℃の温度をえらび実験した結果を Plates 2, 3 に示す。写真は所定の加工度を与えた圧延途中の棒の横断面をとり、エメリーおよびバフ研磨後、エチレングリコール：正リン酸：エチルアルコール（5：5：5）の電解液を用いて電解研磨後偏光により顕微鏡で25倍に拡大して撮影したものである。

α-ウランの加工には双晶形成が重要な役割をもつといわれているが⁽²⁾、600°および500℃いずれの圧延温度の場合も、はじめ明瞭な双晶形成およびその発達が見られる。この段階では結晶粒は圧延方向に引伸ばされ、次第に結晶粒が流動してくるが、ある加工度になると再結晶が始まり、鑄造時の大きな結晶粒が破壊されてゆき、また双晶も消滅してゆく。この再結晶した組織はさらに圧延が進行すると若干微細化されてゆく。

この過程は600°および500℃いずれの圧延温度の場合にも見られる現象であるが、再結晶を開始する加工度および開始する位置に両者に差が認められた。すなわち、500℃圧延の場合は Plate 2 の(e)に見られるように、73%の加工度で横断面中心部から再結晶が始まり、このときに周辺部は(f)に見られるように流動したまままだ再結晶にいたらない。しかし79%の加工度になると全面再結晶した微細な結晶粒となる。一方600℃圧延の場合を見ると、再結晶は加工度23%ですでに起り始めるが、500℃の場合とは逆に横断面の周辺部が先に再結晶し、37%になると全面再結晶した組織になる。500°、600℃ともに再結晶した組織はさらに加工が進行すると微細化してくる。しかしこの実験で行なった最終の81%の加工度の場合を比較すると500℃の場合がより細かな組織となっている。

以上の結果を見ると、粗圧延の温度はその圧延組織にかなり大きな影響を与えるようで、鑄造時の大きな結晶粒を圧延により早期に再結晶微細化するためには、温度を600℃またはそれ以上にすることが望ましい。500℃になると再結晶後の組織は非常に細くなるが、そのためにはかなりの高加工度を必要とする。

次に23mmφの素材を140mm²に熱間粗圧延後600℃で焼ナマシを行なってから、300°および600℃で圧延して10mmφに仕上げた圧延棒の組織を Plate 4 に比較して示す。600℃で圧延したものは再結晶した組織になっているが、300℃での場合は結晶粒が非常に流動しているのが見られる。

4. 圧延による硬さ変化

圧延による加工硬化を知るために棒の横断面をとっ

Polarized light $\times 75$
Plate 4 Microstructure of 10mmφ uranium rod after final reduction of 45% at each temperature

てピッカース硬さを測定した結果を Figs. 3, 4 (次頁) に示す。硬さの測定に当って、ウランの異方性のため圧痕が不規則になりやすく、測定値に若干のバラツキを見たが、図に示した値は、横断面の約20個所の平均値である。粗圧延による変化は、500°、600℃ともにあまり見ないが、仕上り圧延を Gothic pass, Square-oval pass のいずれで行なった場合も、加工度の増加にともなって全体として硬化の傾向が明らかに見られる。一方600℃で圧延した場合、Square-oval pass で oval の溝で圧延された時の硬さはその都度かなり上昇を見る。この理由は前述のように Oval の溝での圧延で横拡りが小さいため、実際の断面減少率がかなり大きくなるためと考えられる。しかしこの場合全体としてはむしろ軟化の傾向が見られた。600℃での Gothic pass は加工度の範囲を広くとれなかったために明らかな傾向はえられなかった。

5. 圧延棒の熱膨脹および熱サイクルの影響

圧延したウラン棒の熱膨脹はその著しい異方性のため加工および熱履歴の相違によって異った挙動を示すことが知られている⁽³⁾。前述の Square-oval pass で仕上り加工度を45%および85%にした場合の熱膨脹曲線（第1回加熱時の曲線）を Fig. 5 (次頁) に示す。図から600℃圧延の場合、加工度が高くなると熱膨脹曲線の温度勾配が大きくなるが、300℃圧延の場合に

Fig. 3 Effect of increased rolling reduction upon hardness (Gothic pass)

Fig. 4 Effect of increased rolling reduction upon hardness (Square-oval pass)

は逆に小さくなり、85%加工度のものは400℃以上で負の熱膨張係数を示す。これら圧延温度、加工度によ

Fig. 5 Thermal expansion curves of uranium rods for various rolling temperature and degree of reduction.

る熱膨張の差は負の熱膨張係数を持つ〔010〕軸方向の方位性と関係している。

85%加工度のものについてさらに加熱—冷却を数回繰返した場合の熱膨張曲線を Figs. 6, 7(次頁)に示す。600℃圧延の場合、加熱および冷却の繰返しによる熱膨張曲線はほとんど一致しているが、300℃圧延の場合は第2回の加熱から負の熱膨張係数の傾向が強く出ており、冷却後常温に戻した時に永久的な伸びが残る。

このようにウランは加熱—冷却の繰返し(熱サイクル

Plate 5 Deformation of uranium rod on thermal cycling between 50° and 550°C

Fig. 6 Thermal expansion curves for uranium rod after final reduction of 85% in area at 300°C

Fig. 7 Thermal expansion curves for uranium rod after final reduction of 85% in area at 600°C

ル)によって寸法の変化が起こるが、600°および300°Cで同様に45%圧延加工した試料を50°から550°Cの温度範囲で加熱—冷却を2,000回繰り返した場合の変形をPlate 5に示す。写真は10mmφ圧延棒の表面を外削した長さ20mmの試料(写真最上部)について行なったものである。いずれの圧延温度の場合も著しい変形を見るが、300°C圧延の場合の方がその程度は若干大きい様子である。

Ⅲ. 結 言

(a) ウランの溝型ロールによる棒圧延に際しては、材料の横並びが、アルミニウム、鋼の熱間圧延に見られる場合よりも小さいという特長があり、また酸化防止のための表面被覆材の関係から、若干特別の考慮を必要とする。

(b) 溝型としては鋼用の Square-oval pass よりも Gothic pass (最終に round pass を含む) の適用により、満足すべきウラン棒の圧延加工ができた。

(c) 300°, 600°C いずれの圧延温度でも、断面減少率が85%の圧延が可能であった。300°Cの圧延では表面が割合いに平滑であったが、600°Cの溶融塩を被覆して行なった場合は多少粗くなっている。

(d) 熱間粗圧延による鑄造組織の破壊および結晶粒微細化状況について実験した結果、600°C圧延の場合は、加工度37%で全面再結晶した細かい組織がえられるが、500°Cの場合には、79%の加工を行なわないと

再結晶が行なわれない。再結晶した結晶粒はさらに加工が進むと微細化されてゆく。圧延による微細化の程度は81%加工と比較すると500°C圧延の場合の方がより細かい。

(e) 圧延による硬さ変化は、300°C圧延では増加が認められるが、600°C圧延の場合は同程度か、あるいは軟化の傾向が見られた。

(f) 圧延棒の熱膨脹曲線は600°と300°C圧延の場合では明らかに異なる傾向を示し、600°Cの場合には加工度とともに熱膨脹曲線の勾配が増加を、300°Cの場合には逆に減少を示し、85%の加工度のものは負の熱膨脹が見られた。また熱サイクルによって圧延棒は300°600°C いずれの圧延温度で加工したものもかなりの変形が見られる。

Plate 6 Rolling mill for making 1"φ uranium rod

Plate 7 Rolls with gothic grooves

(附) ウラン棒の圧延加工に関しては上記のような結果をえており、これら基礎的データを充分考慮して国産第1号炉燃料要素の1"φウラン棒の試作研究を進めているが、これに使用する圧延機(100HP)を Plate 6 に、またその主要部であるロール部分を Plate 7 に示す。

この溝型ロールは前述の Gothic の溝(最後に Round

の溝2個を持つ)によって、2"φの素材からの1"φ丸棒に圧延できるようになっており、圧延荷重の測定も可能であり、この圧延機により燃料棒の製造加工に必要な機械的、冶金学的諸問題をさらに多方面から検討中である。(圧延機は英国 W. H. A. Robertson 会社製作のものである。)

終りに本研究の遂行に当り多大の労を払われた桂秋治氏(古河電工派遣原研外来研究員)に感謝の意を表す。

(1959年 5月4日 受理)

— 参 考 文 献 —

- (1) H. A. SALLER, T. KEELER, R. J. DONLEY :
B. M. I. -800 (Del), Dec. 30 (1952).
- (2) R. W. CAHN : *Acta. Met.*, **1**, 49 (1953).
- (3) F. G. FOOTE : "*Nuclear Metallurgy*", **1**,
(1955), A. I. M. M. E.