技術報告

4. 真空土練圧縮押出機による長尺型二酸化ウラン
核燃料の成形に関する研究

梅屋 薫*, 渡辺 孝章**, 近藤 吉明**

*Development on the UO_2 Fuel Rod Formation by a New Type
of Extruder Combined Auger and Press Mechanism*

By Kaoru UMEYA, Kosho WATANABE and Yoshiaki KONDO

As one of the economical processes to fabricate ceramic fuel, extrusion techniques was studied. It was intended that the process should be such that the obtained rods would be as highly dense and accurate in dimension as is usually claimed for fuel pellets. When the conditions of UO_2 powder, binder, lubricant and water content were properly selected, the kneaded mass was improved to have a moderate plasticity, a high green density and a high sinterability. The results of the preliminary experiment revealed the fact that neither of the auger type and press type extruder was satisfactory for obtaining the uniform rods. To overcome these difficulties, the vacuum extruder furnished auger and press mechanisms, was designed which had the advantages of both type. The rods extruded by this mechanism were enough uniform in quality and free from distortion. It was known that the extruded rods, thus prepared, were sintered to the density higher than 93% Th. D. at $1,700^\circ\text{C}$ for 2 hr in hydrogen with the diametral variation within $\pm 2/100 \sim 3/100$ mm for the rods of about 10 mm in diameter, and with the camber values within $\pm 5/100$ mm for the rods about 200 mm long. Their chemical and physical properties were similar to those of cold compacted and sintered pellets.

I. 緒 言

二酸化ウランは数年前より、アメリカその他世界各国で軽水型発電用原子炉の燃料の立場から詳細な基礎研究が行なわれ、その優秀性が公認された。現在二酸化ウラン焼結体は一般窯業あるいは粉末冶金に用いられている乾式圧縮成形-焼結法(以下乾式圧縮法と略称)により、つぎのようにして製造されている。

まず、乾式圧縮成形により直径 15 mm 以下長さ 30 mm 以下に成形したのち、焼結して高密度な寸法精度のよい、しかもバラツキの少ない二酸化ウラン焼結体とする。これを薄肉の被覆管に装填後、端栓溶接して組み立てて燃料集合体にする。このようなペレット状の燃料を使用する限り、原子炉 1 基当りほう大な個数が必要となる。この乾式圧縮法では、製造上も組立

て上も操作が繁雑になるばかりでなく、スクラップ、ロス量が必然的に増加し、製造原価も高くなることになる。また、二酸化ウラン粉末は不安定な微粉で、高価であるばかりか放射性毒物である。さらに、濃縮ウランは臨界安全量の制限もあるため、従来の乾式圧縮法による限り作業上、保健上特別な注意と繁雑な手数とを要する。

将来における二酸化ウラン燃料の量産化にそなえ、大規模化と連続生産方式とを解決すると共に、成形加工費を低減するための 1 つの手段**として、湿式押出

* 東北大学 工学部 (Faculty Engng., Tohoku Univ.)

** 三菱原子力工業(株) 研究所 (Mitsubishi Atomic Power Ind., Inc.)

** そのほか振動充填、転打加工法⁽¹⁴⁾⁽¹⁵⁾、水圧成形法⁽¹⁶⁾、泥しょう鑄込法⁽¹⁷⁾などの成形加工法も開発されている。

成形-焼結法(以下湿式押出法と略称)が内外諸国で開発されている⁽¹⁾⁻⁽⁹⁾。しかし、この湿式押出法による長尺型セラミック燃料については、核燃料として現在要求されている高密度、均質性、高度な寸法精度および長尺の直線性などの仕様を充分満足させるに至っていないようである。

これらの点を改良するためには、均質高密度な坏土の押出成形体を造ることが最も必要と考えられるので、その目的を満足するような真空土練圧縮押出機⁽¹⁰⁾⁻⁽¹³⁾を考案した。つぎに、二酸化ウラン粉末より調整した坏土を対象として本装置を用いて湿式押出条件の検討を行ない、あわせて長尺型二酸化ウラン焼結体の諸性質を乾式圧縮法による二酸化ウランペレットと対比して検討したので、以下に述べる。

Ⅱ. 真空土練圧縮押出装置

この装置は Plate 1 に示すように $\frac{1}{2}$ HP のモーターを使用した直径 50 mm の縦オーガー、1 HP のモーターを使用した横オーガーよりなる真空土練機と 30 t. 油圧式プレス押出機とを連結して一体とした真空土練圧縮押出機である。

Plate 1 Vacuum extruder furnished with auger and press mechanisms

オーガー部は Fig. 1 に示すような縦オーガーと横オーガーとよりなり、この間にスリットを介して真空脱気室を有する。プレス室は Fig. 2 に示すように断面 90 × 90 mm、長さ 120 mm の四角柱を呈し、直径 145 mm のラムに接続したピストンにより押し出される。ノズルは直径 2 ~ 30 mm まで作り、目的に応じて脱着可能である。オーガーの回転速度は 8 r.p.m.、ピストンの押出速度は 0.1 ~ 65 mm/min である。脱気用のポンプは $\frac{1}{4}$ HP のロータリ形式のもので、50 l/min の排気速度を有し、18 mmHg (20°C) 前後まで脱気することができる。

Fig. 1 Extruder furnished with auger and press mechanisms (Front part)

投入口より供給された混練坏土は縦オーガー翼によりさらに混練され、出口のスリットを経て紐状になり真空脱気されながら下方の貯土部へ横オーガー翼により押し込まれる。Fig. 2 に示したように、この粗形体は外気に触れることなく連続的にプレス室へ挿入される。粗形体の成形が完了すると、連動装置によりオーガー翼の作動は停止し、同時に粗形体はピストンの前進によりノズルを経て圧縮押出成形される。なお、プレス押出成形中オーガー部での脱気は中断し、不必要な脱気は行なわれなくなっている。押出しを終了し、ピストンが後退すると再びオーガー翼の作動が開始する。1 行程の時間は大略 5 min 間である。

Fig. 2 Extruder furnished auger and press mechanisms (Upper part)

Ⅲ. 供試二酸化ウラン粉末ならびに その坏土の調整

原料二酸化ウランは Numec 社製で、見掛け密度 2.1 g/cc、タップ密度 2.9 g/cc、平均粒度 2.7 μ 、O/U 2.07 の天然二酸化ウラン粉末である。これをつぎのような高温還元処理とボールミル粉碎とを行ない、なるべく充填密度の高い、しかも焼結性のよい粒度と粒度分布とを揃えると共に O/U をできるだけ 2.00 に近づけるようにした。すなわち、原料二酸化ウラン粉末約 2 kg ずつをモリブデンボートに入れ、水素気流中で 1,300°C、1 hr 加熱還元したのち、約 2.5 kg ずつ直径 250×250 mm のステンレス鋼ポットに直径 12 mm のスチールボール約 25 kg と共に移し密封後、4 連ポット式振動ボールミルで 6 hr 粉碎した。このように調整された供試二酸化ウラン粉末の性質は Table 1 に示すように平均粒度 0.9 μ 、タップ密度 4.5 g/cc、O/U 2.03、乾式圧縮成形体密度 (2 t./cm² の成形圧) 6.4 g/cc で、1,700°C、2 hr 水素焼結により収縮率 15% で、理論値の 95% の密度を有する。

Table 1 Properties of UO_2 prepared for extrusion

Properties		Result
Color		Brown
Average particle size		0.9 μ
Distribution of particle		<2 μ 2~8 μ 8 μ < 60~65 %, 35 %, 2~5 %
Shape		Irregular mass
O/U ratio		2.03±0.01
Apparent density		2.7±0.1 g/cc
Tapped density		4.5±0.5 g/cc
Green density	by cold compaction (2 t./cm ²)	6.4 g/cc
	by extruder	6.3 g/cc
Sintered density (1,700°C, in H ₂)	cold compact	10.5 g/cc
	extrusion	10.4 g/cc
Chemical analysis (ppm)		Ag : 0.5 Fe : 20
		Al : 10 Mo : 30
		B : <0.2 ₅ Si : 80
		Cd : <0.1 C : 40

つぎに、この調整二酸化ウラン粉末をシグマタイプ双腕型混練機に約 10 kg 移し入れ、カーボキシメチル

セルローズ (以下 C.M.C. と略称) 0.3 %, ワックスエマルジョン 0.7 % および純水約 4.5~7 % 添加したのち、約 4 hr 混練した。なお、場合によっては脱気により、あるいは約 50°C まで加熱することによって水分の調整を行なった。この供試二酸化ウラン坏土の性質は Table 2 に示すように、水分 5.4 % で剪断応力 0.5 kg/cm²、剪断角 1 radian 以上であった。

Table 2 Properties of UO_2 kneaded mass prepared for extrusion

Properties (method or equipment)		Result
Density (by weight and dimension)		6.3±0.1 g/cc
Water content (Shimadzu rapid water contentmeter)		5.4±0.1 %
Shearing stress	Umeiya type wrench-plasto meter	0.9±0.2 kg/cm ²
Shearing strain		1.3±0.1 radian
Pastisity index		1.1±0.1 kg·radian/cm ²

Ⅳ. 実験方法

上記供試二酸化ウラン坏土の塊を投入口より少量ずつ順次挿入したところ、約 10 kg で真空土練圧縮押出機に充填された。ノズル部の入角を 60°, 90°, 120°, 180° に変えたり、またノズルの直径を 2.5, 8, 11.4, 20, 30 mm まで交換した場合についても試験した。押出成形棒は長さ約 1 m ずつ切断したのち、Plate 2 に示すような回転乾燥機にのせ、赤外線にて数 hr 徐々に乾燥したのち、長さ約 20 cm に切断して乾燥棒の直径、真直度、密度などを測定した。

Plate 2 Rotary dryer

なお、上記と同様にして、直径 80 mm、長さ 235 mm のオーガーを直列に連結した International 製オーガー式真空土練機、および直径 145 mm のラムよりなる全圧 30 t. の横型圧縮押出機とを併用した場合についても押出成形を行ない、上記真空土練圧縮押出機の場合と対比した。

これらの押出乾燥成形体はすべて 1,000°C、1 hr 浄化水素気流中で予備焼結されたのち、V 型モリブデン製治具に乗せて 1,700°C、2 hr 浄化水素気流中で焼結

された。このようにして造られた焼結体について直径、真直度、密度を測定した。測定には各条件ごとに10試料採取し、その最高値、最低値、平均値ならびにバラツキ範囲などを求めた。なお、特定の試料について硬度、抗折力、熱伝導率、熱膨脹率、顕微鏡組織、耐食性ならびに化学分析などを行なった。

さらに、上記押出成形法と乾式圧縮成形法とを比較するため、前記調整供試二酸化ウラン粉末にパラフィン1.0%、ステロテックス0.2%を添加し、圧力2 t./cm²で乾式圧縮し、直径11.4 mm、高さ23 mmのペレット状圧粉体を造り、上記押出成形体の場合と同様にして予備焼結・焼結して、焼結体の性質も調べた。

V. 実験結果および考察

1. 水分ならびに結合剤が二酸化ウラン坯土の可塑性に及ぼす影響

混練機で調整された二酸化ウラン坯土の水分ならびに結合剤の量と可塑性との関係はFig. 3に示すように、水分4~6%ではその量が多くなるほど、また結合剤0.3~0.8%ではその添加量が少なくなるほど剪断応力が減少し、剪断角が増加する傾向を示す。本実験範囲では水分5.1~5.7%、結合剤のC.M.C.添加量0.8%が最大の可塑性指数を有する。しかし、結合剤の量の増加は焼結密度を低下したり、不純物炭素の混入のおそれがあるため、本実験としてはC.M.C. 0.7%、ワックスエマルジョン0.7%ならびに水分5.4±0.3%の範囲に調整した坯土を使用した。

Binder: value in the graph of C.M.C. w/o
Lubricant: wax emulsion of 0.7 w/o

Fig. 3 Plasticities of UO₂ kneaded mass

2. 真空土練圧縮押出機で処理した二酸化ウラン坯土の可塑性

二酸化ウラン坯土を真空土練圧縮押出機で処理した場合の可塑性の変化はFig. 4に示すように、剪断応力はオーガー処理のみを行なった坯土よりやや低い値を示す。しかし、剪断角はオーガー処理のみ行なった坯土よりもむしろ大きく、したがって、真空土練圧縮押出機で処理した坯土はオーガー処理のみ行なった坯土とほとんど同じ可塑性指数(剪断応力と剪断角の積)を示す。したがって、真空土練圧縮押出機を使用した場合には、オーガー式真空土練機の場合と同程度の高い可塑性指数で圧縮押出成形できることを知った。

Binder: C.M.C. 0.8 w/o
Lubricant: wax emulsion 0.7 w/o

Fig. 4 Plasticities of UO₂ kneaded mass prepared by each method

3. 真空土練圧縮押出法による二酸化ウラン押出成形体の密度および直径寸法

真空土練圧縮押出法で二酸化ウラン坯土を押出成形したところ、Fig. 5に示すように成形体の密度および直径は坯土の水分に著しく影響を受ける。すなわち、坯土の水分が増加するに従って成形体の密度、直径は減少する傾向にある。焼結体も成形体とはほぼ同じ傾向を示している。本実験結果から、湿式押出法で高密度にして寸法精度の良好な成形体をうるには、坯土の水分をできるだけ狭い範囲に調整する必要を認めた。

Extrusion method: furnished with auger and press mechanisms with 11.4 mm ϕ nozzle
Sintering condition: 1,700°C, 2 hr in H₂

Fig. 5 Properties of extruded and sintered rods prepared by the UO₂ kneaded mass

4. ノズル入角, 直径寸法が成形体に及ぼす影響

水分を一定に調整した二酸化ウラン坯土をノズル入角60°, 90°, 120°, 180°のノズルで押し出した場合, 成形体の密度は 6.4 ± 0.2 g/ccで実験誤差範囲内で一定となった。また, ノズルの直径を8, 11.4, 20 mmに変えた場合, 押出成形に要する圧力はノズルの径が大きくなるに従って減少の傾向にある。しかし, 成形体密度はいずれも 6.4 ± 0.2 g/ccで実験誤差範囲内で一定であった。したがって, 気泡のない水分を一定に調整した坯土を使用した場合, 成形体の密度は押出圧力の大小にかかわらず一定になるものと考えられる。すなわち, 押出成形においては, 乾式圧縮成形のように成形圧力に密度が比例することなく, 坯土がノズルを通して変形されるのみであると考えられる。

5. 各種押出法による成形体, 焼結体の性質の比較

オーガー法, プレス法, オーガー・プレス併用法, 真空土練圧縮法の各押出法による成形体, 焼結体の性質はTable 3に示すように, 成形体の密度についてはオーガー法と真空土練圧縮法が高く, 寸法精度に関しては真円度, 真直度いずれも真空土練圧縮法が著しく良好である。焼結体の密度, 寸法精度も成形体のそれと同様な傾向を示す。オーガー法および真空土練圧縮法において高密度な値を示すのは, オーガー処理によって脱気が行なわれたためと考えられる。また, 真空土練圧縮法において寸法精度の著しく良好な原因

Table 3 Properties of extruded and sintered rods by various extrusion methods

		Method of extrusion	Auger	Press	Auger and press	Furnished with auger and press mechanisms
Green extruded rods	Density (g/cc)	Maximum	6.51	6.43	6.42	6.46
		Minimum	6.35	6.21	6.24	6.37
		Range	0.16	0.22	0.18	0.09
		Average	6.41	6.30	6.32	6.42
	Diameter (mm)	Maximum	11.43	11.40	11.42	11.35
		Minimum	11.26	11.24	11.25	11.30
		Range	0.17	0.16	0.17	0.05
		Average	11.34	11.32	11.33	11.32
	Straightness (mm)	Maximum	0.25	0.21	0.22	0.10
		Minimum	0.10	0.11	0.11	0.02
		Range	0.15	0.10	0.11	0.08
		Average	0.18	0.19	0.19	0.05

Method of extrusion			Auger	Press	Auger and press	Furnished with auger and press mechanisms
Sintered rods	Density (g/cc)	Maximum	10.41	10.30	10.31	10.40
		Minimum	10.21	10.09	10.09	10.25
		Range	0.20	0.21	0.22	0.15
		Average	10.32	10.21	10.23	10.32
	Diameter (mm)	Maximum	9.69	9.71	9.70	9.65
		Minimum	9.48	9.52	9.50	9.61
		Range	0.21	0.19	0.20	0.04
		Average	9.62	9.63	9.64	9.62
	Straightness (mm)	Maximum	0.27	0.23	0.22	0.10
		Minimum	0.12	0.11	0.11	0.01
		Range	0.20	0.11	0.11	0.09
		Average	0.17	0.16	0.16	0.05

は、オーガー法のようにオーガー翼によるネジレ、密度のムラが成形体に現われないためか、あるいはプレス法のように脱気不完全による気泡の存在、長時間の脱気による坯土の不均質が成形体に現われないためと考えられる。

6. 乾式圧縮法と湿式押出法の焼結体の比較

同一条件で焼結された乾式圧縮法によるペレット状焼結体と湿式押出法による棒状焼結体とを比較してみると、Table 4 ならびに Plates 5～8 に示すように、本実験範囲内ではほとんど同一の性質を示す。湿式押出法の密度は乾式圧縮法に比べてやや低い、これは主として成形のさい用いられた結合剤の種類、量の相違に起因するものと考えられる。なお、気孔についてはいずれも閉気孔で、その状況は Plates 5, 6 に示す

ように細かく分散しているが、湿式押出の方がやや大きな気孔を示す。これも主として結合剤に起因するものと考えられる。顕微鏡組織、硬度、抗折力、熱伝導率、熱膨脹率、O/U、耐食性ならびに化学的性質は Table 4 に示すように、実験誤差の範囲内でいずれも同様な値を示す。

Plate 4 Sintered pellets by cold compaction

Plate 3 Sintered rod by extruder furnished with auger and press mechanisms

Table 4 Properties of sintered rods and pellets obtained by extrusion and cold compaction methods

Properties	Extrusion	Cold compaction
Diameter (roundness) (mm)	9.62 (2~5/100)	9.61 (1~2/100)
Length (straightness) (mm)	200 (±5/100)	18.0 (1/100)

Properties		Extrusion	Cold compaction
Density	(g/cc)	10.3±0.1	10.4±0.1
	(%)	94±1	95±1
Porosity	open(%)	0	0
	closed(%)	5~7	4~6
Hardness (V.H.N.)		750±25	750±25
Transverse rupture strength (kg/mm ²)		8~12	8~10
Thermal conductivity (cal/sec.°C·cm ²)		0.029 (room temp.)	0.030 (room temp.)
Coefficient thermal expansion (1/°C)		9.95×10 ⁻⁶	9.95×10 ⁻⁶
O/U ratio		2.00	2.00
Stability (200°C, 85 atm pH 10 in water)		Non difference, 50 hr	Non difference, 50 hr

Properties		Extrusion	Cold compaction
Microscopic structure	Pore	Plate 5	Plate 6
	Grain size	Plate 7	Plate 8
Appearance		Plate 3	Plate 4
Chemical analysis(ppm)		Ag: 0.4	Ag: 0.4
		Al: 12	Al: 13
		B: <0.25	B: <0.25
		Cd: <0.1	Cd: <0.1
		Fe: 150	Fe: 102
		Mo: 156	Mo: 160
		Si: 109	Si: 115
		C: 106	C: 80

Plate 5 Photomicrograph of polished surface prepared by extrusion method

Plate 6 Photomicrograph of polished surface of pellet

Plate 7 Photomicrograph of polished and etched surface prepared by extrusion method

Plate 8 Photomicrograph of polished and etched surface of pellet

寸法精度はPlate 3 および Table 4 に示したように、湿式押出法による棒状 UO_2 焼結体は直径 10 mm、長さ 200 mm で、真円度 ±0.02 mm、真直度 ±0.05 mm の範囲にあり、乾式圧縮法によるペレット状焼結体に比較的近い精度を示す。したがって、真空土練圧縮押出機を使用して湿式押出法により造られた長尺型セラミ

ック燃料体は、乾式圧縮法によるペレットと同様に、セラミック核燃料として使用しうる見込みを得た。

VI. 結 言

以上を要約するとつぎのようにいことができる。

(1) 湿式押出成形法により均質にして高度な寸法精

度を有するセラミック核燃料棒を造るためには、とくにつぎの点が重要である。

まず、結合剤、潤滑剤ならびに水分を適当に選定し、可塑性の良好な坯土を調整する。これを従来一般窯業に使用されているオーガー式真空土練機あるいはプレス式圧縮押出機ではなく、本実験に用いたような真空土練圧縮押出機を使用する。

- (2) 真空土練圧縮押出法によれば、ノズル入角、直径の大小は、本実験範囲では密度に直接影響に及ぼさない。
- (3) 真空土練圧縮押出機を使用し、湿式押出法によって造られた焼結棒はその長さ 200 mm 以上で、またその性質は乾式圧縮法によるペレット状焼結体とはほぼ同様な性質を有する。

(1963年 4月1日 受理)

— 参 考 文 献 —

- (1) D. R. STENQUIST, R. J. ANICETTI: *Ceramic Industry*, **71**, 102~103 (Oct. 1958).
- (2) A. M. GRAY, R. C. McGRATH: *C.V.N.A.*-22, 1~7 (1958).
- (3) F. S. GARDNER: *N.M.I.*-2504, 1~5 (1959).

- (4) R. HAUSER: Plansee Seminar, (June 1961).
- (5) U.S.A.E.C.: *TID*-11750, (1961).
- (6) 渡辺孝章, 小倉正士, 山本一雄, 近藤吉明: 第2回原子力研究総合発表会要旨集, C 19, (1961).
- (7) 渡辺孝章, 近藤吉明, 横山正勝: 窯業協会研究発表講演集, 2, (1961).
- (8) 窪田治夫, 西山 厚, 石田隆一, 笠松利夫: 粉体および粉末冶金春期大会概要集, 6, (1961).
- (9) 渡辺孝章, 小倉正士, 近藤吉明, 横山正勝: 同上, 6, (1961).
- (10) 梅屋薫, 渡辺孝章, 小倉正士, 近藤吉明, 横山正勝: 同上, 秋期大会概要集, 47, (1961).
- (11) 梅屋 薫, 渡辺孝章, 近藤吉明: 特許出願中, 出願 No. 36-27836.
- (12) 渡辺孝章, 小倉正士, 近藤吉明, 横山正勝: 日本原子力学会第1回核燃料分科発表会要旨集, 9, (1961).
- (13) 近藤吉明, 渡辺孝章, 小倉正士, 横山正勝: 窯業協会研究発表会講演集, 173~182 (1962).
- (14) 稲生光吉: 日米合同原子力会議講演集, 5, (1961).
- (15) 高橋修一郎, 本田 裕: 第1回原子力研究総合発表会要旨集, D 40, 41, (1960).
- (16) H. W. NEWKIRK, R. J. ANICETTI: *Ceramic Bulletin*, **37**, 471~475 (1958).
- (17) G. J. COMSTOCK: *TID*-5629, (1960).
- (18) G. J. COMSTOCK: *AECU*-4255, (1959).

本誌バックナンバー

会員は2割引で入手できる

本誌のバックナンバーは1959年6月創刊以来全部揃っております。会員には(定価200円)の2割引で頒布していますので、品切れにならぬうちに申し込み下さい。(送料実費)

本 誌 専 用 合 本 ファ イ ル

本誌1年分12冊を、簡単な操作で自由に入れ替えてできるファイルがあります。B5判布装幀で、金文字の会誌名が入った美麗・堅牢なもので、大変便利で好評をいただいております。

1冊 ￥150円(〒80円)

「日本工学会手帖」の予約申込ご案内

例年のとおり本年も昭和39年(1964)用日本工学会手帖をご好評により下記のとおり発行いたしますから、何卒予約お申し込み下さい。

記

1. 表 紙	ビニール製
2. 寸 法	15 cm×9.5 cm
3. 定 価	200円(送料共220円)
4. 予約申込	昭和38年10月末日まで
5. 予約申込	本会または日本工学会
6. 支払期日	昭和38年11月20日まで
7. 発送期日	" 12月上旬より

社団法人日本工学会

東京都千代田区神田佐久間町1-11 社団法人建設協会内
電話251-4358 振替口座 東京5055番