

JAERI-M

5992

ラバープレス法による燃料コンパクトの調整

1975年2月

岩本 多實・飛田 勉・榊山 年夫\*・山添 宏\*

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

ラバープレス法による燃料コンパクトの調製

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部

岩本多実，飛田勉，榊山年夫<sup>※</sup>，山添宏<sup>※</sup>

(1975年1月29日受理)

ラバープレス法による高温ガス炉用燃料コンパクトの調製を模擬燃料粒子を用いて試み，その可能性について検討した。一軸的に加圧する押出しや金型プレス法に対し，ラバープレス法は無限多軸的な加圧法であるため，成形体に均一な圧力が加わり，高密度で均質な成形品が得られる。このため焼成による収縮歪が少なく均一に収縮する。コンパクトの成形は側面より加圧するので径の太さに限定されず長い成形体を得ることができると同時にクラッド部を厚くすることにより，黒鉛スリーブを兼ねた一体化燃料の調製もし得る。

Preparation of HTR fuel compact by rubber pressing

Kazumi IWAMOTO, Tsutomu TOBITA

Toshio MASUYAMA<sup>\*</sup> and Hiroshi YAMAZOE<sup>\*</sup>

Division of Nuclear Fuel Research, Tokai, JAERI

(Received January 29, 1975)

The fuel compact containing dummy fuel particles for a high temperature gas cooled reactor has been prepared by a rubber pressing technique, to study feasibility of the method. In this process, the pressure is applied all around the mixture; in contrast with the conventional metal-molding which only presses longitudinal.

The product prepared has high density and good uniformity; shrinkage in sintering is small and uniform. The compact can be prepared in any size without limit in a diameter, and by making thick cladding a sleeve itself can also be prepared at the same time.

\* Nippon Carbon Co. Ltd.

# 目次なし

## 1. はじめに

高温ガス炉用燃料として開発された燃料コンパクトは被覆粒子を黒鉛マトリックス中に分散させたものである。これらの燃料は黒鉛粉末にバインダーを加え、燃料粒子を混ぜ、型枠で加圧成形して作られるものであるがその形状によって製造方法も異なってくる。一般に円筒状の燃料については金型による加圧成形法が適用され、また長尺のものについては押し出し成形法などで行なわれている。そして、これらの燃料コンパクトを実用するには機械加工された黒鉛のスリーブ内に納めて燃料棒とするがこの際コンパクトとスリーブ間の隙間が熱移動の抵抗となり、また照射による寸法変化が機械的に相互作用を引き起し、燃料に悪い影響をすることも考えられる。これらの問題を解決するため、新しい技術の開発が各国で活発に進められており、最近ではコンパクトとスリーブとを一体物とした燃料を製造する方法が検討されている。西ドイツのAVR炉用燃料では球状燃料にラバープレス法を適用することによって燃料部分と黒鉛殻よりなるスリーブの部分为一体として製造する試みを、ドラゴン炉ではオーバーコート温間金型プレス法を試みている。しかし、これらコンパクトの製造に関する研究報告は数少なく入手し難いのが現状である。したがって、現在高温、高出力の使用に耐えうる高性能の高温ガス炉の燃料を開発するには各国独自の開発研究が急務とされている。

本研究ではラバープレス法で被覆粒子の代わりにアルミナ粒子および黒鉛ビーズ(粒子)の模擬燃料粒子を分散させた模擬燃料コンパクトの調製を試みたのでその結果を報告する。

## 2. 実験方法

分散する粒子として被覆燃料粒子の代わりにアルミナ粒子と黒鉛ビーズを用い、これらを黒鉛粉末とバインダーの混合物でオーバーコートしてからラバープレスで側面から均一圧で圧縮成形し、さらに炭化焼成してコンパクトを得た。焼成後はコンパクトの表面を機械加工して仕上げを行なった。この工程の各段階は以下に示す方法で行なった。実験に使用した粒子、黒鉛粉末、バインダーの概要をTable 1に示す。

### 2.1 オーバーコート

この工程はコンパクト中の被覆粒子の分散を均一にするために行なわれる方法であり、オーバーコートの厚さは燃料充填量(V/O)より計算で求められる。本実験では造粒機を使用した。まづ回転ドラムに模擬燃料粒子(黒鉛微小球、アルミナ球)を入れ、ドラムを回転させながらマトリックス材となる人造黒鉛粉末とバインダーとの混合物を少量づつ投入し、所定の厚さまでオーバーコートした。模擬粒子がアルミナ粒子のようにオーバーコートする混合物との間に比重の差が大きい場合にはオーバーコートは容易であったが、黒鉛粒子のように比重の差がほ

とんど無い場合には核なしのオーバーコート球や逆に複数の核をもったものが生じやすくオーバーコートが困難であった。しかし、この核なし球の場合、一般に他の球に比較して粗大な球ができ易く、これを除くのに分級を行なった。またオーバーコートされた球は大きさが等しくないので篩分けにより規格内球と規格外球に選別した。規格内球はさらに比重選別試験に掛けられ、核を持たないものが取り除かれた。比重選別はクロロホルムとプロモホルムを混ぜ、比重を調整した混合液に浸して行なった。ただし、黒鉛粒子を入れたオーバーコート球についてはマトリックス材と比重差が少ないため、比重選別法が適用できなかった。一方コンパクトの外側を覆う黒鉛スリーブ(クラッド)に相当する黒鉛だけの部分についても造粒機を使用し、黒鉛粉末とバインダーを混ぜ合せ、適当な粒径をもった黒鉛造粒粉を作った。この処置はコンパクト内部のオーバーコート球と同一な機械的性質を与えることによって加圧成形後両者の弾性的差によるクラッド部分の離れ(スプリングバック)を防ぐためである。

Table 2 にコンパクトの調製条件を示し、Fig. 1 にオーバーコート方法を示す。黒鉛粉末に添加するバインダー量の選択にあたっては黒鉛粉末のみを基準として、その25重量パーセント加えることにし、模擬燃料粒子に対しては比表面積が黒鉛粉末に比較して小さいため無視した。粒子充填率は当初比重と計算値より71CP-10A, 71CP-40A用に20V/O, 71CP-30A用に30V/O 予定したが、粒子の分散度を良くするため、オーバーコート球を分級し、整球をしたので粒度管理による充填率のコントロールの可能性について検討することにした。

粒子充填率： $V_f$  は

$$V_f = \frac{d^3}{D^3}$$

$d$  : 模擬燃料粒子の直径

$D$  : オーバーコート球の直径

黒鉛ビーズの場合(平均粒径0.28mm)

$V_f$	$D$ (mm)	篩の目開き(メッシュ)
0.2	0.479	28~35
0.3	0.418	32~42

上記式では加圧成形による収縮、焼成による収縮が見込まれないため、当初の予定値である $V_f$ を20±2, 30±2にコントロールすることは困難であるが今回は分級による整球を28~48メッシュで行ない、これより $V_f$ の変化を測定することにした。

## 2.2 ラバースプレ成形

Fig. 2 にラバースプレ法による模擬燃料コンパクトの調製法を示す。本調製方法は一般のオーバーコートプレス法とほぼ同様な工程であるが、試料加圧成形の際、金型枠の代わりにゴム型(ラバー)を使用し、このゴム型に油圧を掛けることによって試料の側面より締め付ける方法である。この場合、試料はゴム型によって包まれており、圧力媒体である油がコンパクトに直接接触しないようになっているので別名ドライ法とも云われる。したがって、ラバースプレ成形法ではコンパクトの軸方向に添ってマトリックス密度の均一なものは容易にできるが形状の一

定なものではできない。それでこの方法によりコンパクトを成形する場合は、まずオーバーコートした球を金型に入れ仮成形をし、コンパクトの形状を整えた。

Fig. 3 にラバープレス成形法を示す。本実験では Fig. 3-a に示す内径  $24.0^{mm}\phi \times 105^{mm}$  の金型の中心に直径  $8^{mm}\phi$  の黒鉛棒を入れ、これを芯として黒鉛造粒粉、オーバーコート球、黒鉛造粒粉の順に入れて低圧 ( $50 \text{ Kg/cm}^2$ ) で加圧、仮成形を行なった。充填物の量はコンパクト仮成形の長さが  $40^{mm}$  になるように黒鉛造粒粉とオーバーコート球が秤量してある。成形物は金型より押出され、その上下端部に突き出た黒鉛芯が切断され、Fig. 3-b に示されるような上下を黒鉛粉でカバーされた  $24.0^{mm}\phi \times 40^{mm}$  のオーバーコート球の仮成形品が得られる。そしてこの仮成形体の側面にも上下端面に付けられた黒鉛造粒粉が同様に付けられるがこの工程にラバープレス法を適用した。

まず Fig. 3-c に示されるゴム型のほど中央に仮成形品を置き、その廻りに黒鉛造粒粉を満たし、上下端面に金型の押えをしてから油圧で側面より締め上げる。油圧でゴム型は収縮し、均一な圧力が黒鉛造粒粉の部分と燃料 (オーバーコート球) の部分に掛けられる。成形圧は油圧ゲージ  $200 \text{ Kg/cm}^2$  で行なった。ラバープレス成形後は試料を取出し、中心の黒鉛芯を引き抜き中空のコンパクトが得られる。この成形品は表面をバインダーの混った黒鉛粉で被覆され、Fig. 3-d に示されるような上下端部に突起を有する。

### 2.3 焼成、含浸処理

焼成は  $800^\circ\text{C}$  焼成、 $1300^\circ\text{C}$  焼成、 $1800^\circ\text{C}$  焼成の三ステップで行ない、そのうち一部の試料に  $800^\circ\text{C}$  焼成後含浸処理を行なった。Fig. 4 に焼成と含浸の行程図を示す。ただし、アルミナ粒子の入った試料については最終焼成温度を  $1300^\circ\text{C}$  とし、含浸処理は行なわなかった。この含浸処理はコンパクトのマトリックス密度が約  $1.65 \text{ g/cm}^3$  以下では特に必要とされないが、高い密度としてコンパクトマトリックスの伝熱特性と強度を上げるためには含浸処理が行なわれる。また含浸処理をするとコンパクトの表面に樹脂が付着し、硬化するのでこれを除去するために表面処理が必要になり、表面に機械加工代を付ける必要がある。含浸は通常オートクレーブを使用し、容器内部を真空に排気した後、液状の含浸剤 (樹脂バインダー) を注入、加圧して、試料中のオープンポアに含浸剤を浸透させることによって行なわれるが、本実験では試料の都合上硝子製容器で行なった。含浸後コンパクトを加熱して浸透した樹脂を硬化させ、 $1300^\circ\text{C}$  で焼成し、密度検査を行ない、不足のものについては再び含浸処理を繰返す。含浸剤には DVB (デビニールベンゼン) を用いた。

$800^\circ\text{C}$  焼成はニクロム線炉を使用し、窒素ガス雰囲気中で酸化を防ぎつつゆるやかな昇温速度で行なった。昇温速度は低温領域で  $2 \sim 3^\circ\text{C/hr}$ 、高温領域で  $50^\circ\text{C/hr}$  の二段階で行ない、 $800^\circ\text{C}$  までの焼成サイクルに約 1 週間を要した。この焼成温度領域ではバインダー中の炭素成分の環化、重縮合、芳香族平面の成長が起り、炭化が進行する過程である。ここで昇温速度を早めることはこれらの反応が充分に行なわれず、その結果製品の割れや樹脂バインダーの炭化率の低下、焼成による収縮が充分でないため密度が低下し、コンパクトの特性が劣化する。

$1300^\circ\text{C}$  焼成は窒素ガスを流した電気炉で行なった。ここでは一次焼成したコンパクトを



室温より1300℃まで100℃/hrの昇温速度で加熱し、より高温での残留ガスや揮発性物質を除去すると同時に、結合剤として加えたバインダー中の炭素成分を完全に炭化することを目的としている。1800℃焼成はタンマン炉を使用し、1800℃に加熱された炉内を黒鉛製容器に試料を入れ、通過させる方式によって行なった。焼成雰囲気は二次焼成と同じく窒素ガスを流して熱処理中の酸化を防止した。この最終熱処理温度は高温ガス炉の使用条件を加味して行なわれるもので、燃料の実際の使用温度よりも僅かに高い温度で行なわれ、使用条件下での脱ガス防止を目的としている。したがって、大部分の揮発性物質はこの三次焼成の過程で除去されているものと思われる。

#### 2.4 機械加工

ラバープレス成形法で得たコンパクトはFig. 3-dに示されるように上下端部に凸が生じて一定の寸法を有していないので外面は機械加工によって所定の寸法に仕上げなければならない。本実験では外径を2.4mm $\phi$ 、長さ4.00mmに加工した。機械加工によってコンパクトの側面にラバープレスで付けた黒鉛粉のみのクラッドの部分は0.5~1.0mm程度の厚さになったがオーバーコート球で作った燃料に相当する部分と離れるようなことは起らなかった。またクラッドの部分の厚みも円周方向に一定で芯よりずれるようなこともなかった。コンパクトの内径は成形、焼成のまゝで機械加工は行なわなかった。Fig. 5に機械加工したコンパクトの外観写真を金型プレス法で得たものと比較して示す。

### 3. 成形品に対する試験

#### 3.1 寸法、重量、密度測定

コンパクトの寸法測定は外径を長さ方向に三箇所マイクロメーターで、長さと内径をノギスで測定した。コンパクトの内径は機械加工されていないので焼成のまゝ、そして含浸処理をしたものは含浸樹脂の付着したまゝである。Table 3に寸法、密度、電気抵抗測定結果を金型で成形したものと比較して示す。この結果コンパクトの外径と長さは仕様規格(2.40 $\pm$ 0.1, 4.00 $\pm$ 1.0)内であったが内径は小さくなっていた。またコンパクトの外径は機械加工で仕上げられておるためばらつきが小さく、目標の寸法に近い値となっている。Fig. 6にコンパクトの寸法精度とばらつきを示す。表中のコンパクトの嵩密度は寸法、重量測定より下記に示す計算式で求めた。

$$\rho = \frac{W}{\pi/4 \left[ \left( \frac{D_1 + D_2 + D_3}{3} \right)^2 - \left( \frac{d_1 + d_2}{2} \right)^2 \right] h}$$

こゝに

W : コンパクト重量 (g)

$D_{1\sim 3}$  : コンパクト外径 (cm)

- $d_{1-3}$  : コンパクト内径 (cm)  
 $h$  : 長さ (cm)  
 $\rho$  : コンパクト嵩密度 ( $g/cm^3$ )

密度は仕様規格である  $1.3 g/cm^3$  より充分に大きく、含浸した試料では未含浸のものより重量、密度共に上り含浸効果が見られた。これらの試料と比較して金型プレスで成形した試料の密度は約5パーセント程低い。密度の均一性について、超音波伝播法でコンパクトの長さ方向に調べた結果、Fig. 7 に示されるようにラバープレス製品はコンパクトの軸方向に均一であるが金型プレスで成形した試料では図の中央部分が下り、密度に差があることが示される。

Table 4 に測定したコンパクトの超音波伝播時間の測定値を示す。

### 3.2 電気抵抗

測定は JISR 7202 による電圧降下法で行なった。実験では試料に均一な電流が流れるよう両極端を適当な端子で結ばれたコンパクトに 2.0 A の直流を通し、その試料内で生じた電圧降下を 2.0 cm の標点で固定した金属針で測定し、下記の計算式で抵抗を計算した。Fig. 8 に装置の概略図を示す。

$$R = \frac{e \cdot S}{i \cdot \ell}$$

ここに

- $R$  : 固有抵抗 ( $\Omega cm$ )  
 $S$  : 供試体の断面積 ( $cm^2$ )  
 $e$  : 2点間の電圧降下 (V)  
 $i$  : 電流 (A)  
 $\ell$  : 電圧端子間の距離 (cm)

試料の電気抵抗測定結果は Table 3 に示されるように模擬粒子として黒鉛ビーズを入れた試料 71FP10A と 71FP30A では電気抵抗値が約  $340 \times 10^{-5} \Omega cm$  であり、アルミナ粒子を入れた試料 71FP40A では約  $1,000 \times 10^{-5} \Omega cm$  となり、黒鉛ビーズの入ったものに比べて3倍程度大きかった。また黒鉛ビーズの入った試料についても一般の黒鉛材料や原子炉用黒鉛材と比較すると約1桁程度電気抵抗が高くなっている。含浸処理をした試料は密度測定でも増大が示されたように電気抵抗も他の試料と比較して約1割程度低くなっている。

### 3.3 金相試験

金相試験ではコンパクトを半径方向と縦軸方向に切断し、マトリックスのしまり具合、クラッドと燃料部との接合状態、クラッドの厚さそして粒子の分散状態を直接観察した。Fig. 9 に黒鉛ビーズを入れた 71CP10A およびアルミナ粒子を入れた 71CP40A 試料の顕微鏡写真を示す。写真はコンパクトの断面を約3倍に引き伸ばしたものであるが黒鉛マトリックスに空隙やボイド等は観察されず、充填が不完全な組織は見られない。また燃料部分の外側にラバープレス法で付けたクラッド部を約 0.9 mm の厚さに機械加工しても離れる箇所は見られなく、しかもその厚さが円周方向、軸方向何れも均一である。模擬粒子の分散状態は写真に見られるよ

うに黒鉛ビーズ、アルミナ粒子何れも均一ではなかった。

### 3.4 熱処理試験

ラバープレス法で調製した試料の熱的挙動を調べるため、黒鉛ビーズの入った71CP10Aおよび71CP30A試料を電気炉に入れ、アルゴン雰囲気中温度1400℃で約20時間加熱した。コンパクトの熱的挙動は試料の調製原料、調製方法および焼成技術に大きく影響を受け、その物理的、機械的性質を変える。したがって本試験ではラバープレスにより付けたクラッド部と仮成形で得た燃料部との接合部分の熱的性質の違いによる変化を主に寸法、重量、密度などを測定した。Table 5に熱処理した試料の寸法、重量、密度の試験結果を示す。加熱後試料の寸法、重量は全般的に減少する傾向を示し、密度は逆に増加する傾向が示され、熱処理による試料の焼きしまりが起っているようである。外観検査では肉眼による観察および低倍率の万能投影機を使用し観察したが試料表面にカケ、割れ、ふくれなど加熱前と比較して著しい変化は認められなかった。クラッド部と燃料部分との結合箇所は試料を輪切りおよび縦軸方向に切断、その断面を研磨し顕微鏡による観察を行なった。Fig. 10に熱処理した試料の顕微鏡観察写真を示す。この写真に見られるように加熱後においてもクラッド部と燃料部分は離れることなく完全に付いていることが示される。

## 4. 考 察

コンパクトの外径および長さは最終仕上げを機械加工で行なうため、その寸法精度は工作機械の加工可能の精度まで上げることができ、ばらつきも金型製品に比べて小さくなる。そして、一般の黒鉛材の機械加工精度は40mmφで±0.05mm程度まで可能とされている。内径は目標値より小さくなっていったが、これは焼成のまゝで収縮が生じたものと思われる。この点については予備実験などを通してその収縮量を予測し、仮成形の寸法を大きく取ることによって解決できるものと思われる。本実験では焼成による収縮量は約2パーセント程度となっている。コンパクトの嵩密度は目標値で1.3g/cm<sup>3</sup>以上であったが、測定結果によると黒鉛ビーズ入り試料で約1.59g/cm<sup>3</sup>、アルミナ粒子入り試料で約2.35g/cm<sup>3</sup>と何れも目標値を十分に越していた。また実験からこれらの値は原料黒鉛粉末の配合調整、成形圧の調節によってさらに増すことも可能であると考えられる。試験的に含浸処理をした試料は重量、密度共に上がり、その効果が示されているが本実験では試料数が少ないので今後の実験を加え検討する必要があると思われる。

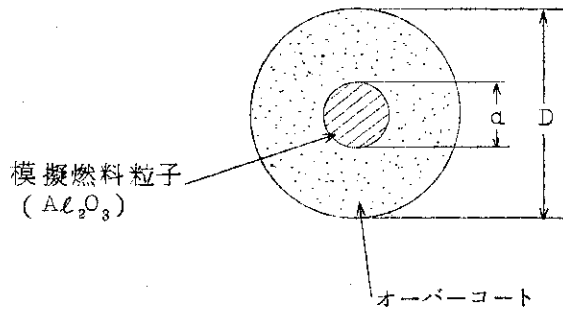
最初アルミナ粒子の入った試料の調製で燃料部分とクラッド部のオーバーコート球の大きさを等して行なった結果、ラバープレス後および一次焼成後Fig. 11に示されるようにその合わせ目の箇所に割れが生じ失敗した。実験より、試料の加圧成形後の割れはオーバーコート球の弾性的差によるスプリングバック現象であり、焼成による割れは収縮量の差によるものと考えられ、これらの問題点を解決するため、クラッド部の造粒径を調節することにより両者の特性

を等しくし解決した。

コンパクト中の粒子の分散度および充填量はオーバーコート厚さにより決まり、本実験ではこれらの調節を分級と比重選別法で行なった。しかし、コンパクト断面の顕微鏡観察では均一でなかった。この点についてはオーバーコートと整球が技術的に未完成である上、黒鉛ビーズのようにオーバーコート材と比重がほぼ等しいため、核なしのオーバーコート球や複数の核をもったオーバーコート球ができ、これらを容易に選別できないためである。しかし、アルミナ粒子のようにオーバーコート材と比重に差がある場合はこのような問題は軽減され、また比重選別試験などで核の有無を容易に区別できた。

オーバーコート厚さは粒子の充填量より計算で求められるが実際にはコンパクト成形の際の成形圧や焼成による収縮が起り、オーバーコート厚さが減少し、粒子充填率を変化させる原因となる。これらの収縮量の予測は予備実験などである程度確かめることもできるがここでは粒度管理と比重による選別の可能性を検討するため、まず分級によりオーバーコート球を一定とし、充填率の変化を測定した。直径  $d$  のアルミナ球に黒鉛粉末とバインダーを混合したものをオーバーコートして直径  $D$  の球を得た場合、アルミナ球の体積比  $V_f'$  は

$$V_f' = \frac{d^3}{D^3}$$



となる。模擬燃料粒子（アルミナ球）は一定のものであるからオーバーコート厚さ（外径： $D$ ）を変えることによって  $V_f'$  がコントロールされることになる。一方オーバーコート球の成形、焼成により得られるコンパクトの  $V_f$  はこのオーバーコート部の成形による収縮と焼成による収縮が起るため補正が必要となり、次式のようになる。

$$V_f = \frac{V_f'}{(1-\eta_1)(1-\eta_2)}$$

ここで

$\eta_1$ : 成形圧による収縮量

$\eta_2$ : 焼成による収縮量

$V_f$ : 焼成されたコンパクト中の模擬粒子の体積比

本実験でオーバーコートしたアルミナ球を12～28メッシュの篩で分級し、比重測定した結果2.467で、この場合の重量は2.641グラムであった。これをエチルアルコールで洗浄し、オーバーコート部分を取り除き、アルミナ球のみの重量を秤量したところ1.479グラムであった。これらの値とアルミナ球の比重（3.598）から、オーバーコート部の黒鉛粉末とバインダーの混合物の比重は1.765となる。一方混合物の真比重は約1.80であるので最大収縮率は約2パーセントとなる。ここで、

$$(1 - \eta_1)(1 - \eta_2) \approx (1 - \eta)$$

として、 $\eta$ の値の値を約6パーセントとすると(オーバーコート球が等しくないので約3倍の過大評価)

$$V_f = 1.06 V_f'$$

となる。

アルミナ球の入ったオーバーコート球を分級した結果は、

分級メッシュ	$V_f'$ (%)	$V_f$ (%)
9~12	24.7	26.3
12~14	33.7	35.8
12~28	38.0	40.4

である。これより実験では12~28メッシュの篩で分級しているため、試料71CP40A中に含まれるアルミナ粒子の量は約40パーセントと推定され、目標値の約2倍となっている。したがって、充填率を20パーセントにコントロールするには式より、 $V_f' = 18.87$ パーセント、 $d = 0.94 \text{ mm}$ 、 $D = 1.64 \text{ mm}$ となり、この $D = 1.64 \text{ mm}$ は篩の目から9~12メッシュに相当する。しかし、9~12メッシュで分級したものは $V_f'$ が24.7パーセントになるため、篩の目はもう一段大きい8~12または8~11が適当と思われる。カーボンビーズの入った試料についても同様な方法で検討した。そして充填率20パーセントを目標として、28~48メッシュの篩で分級したところ $V_f$ は41.5パーセントと推定される。したがってこの場合も $V_f$ を20パーセントとするにはもっと大きなオーバーコート球を作る必要がある。

比重による充填量のコントロールでは、まずオーバーコート球の比重 $\rho$ は

$$\rho = \rho_1 V_f' + \rho_2 (1 - V_f')$$

ここで

$\rho_1$ : 模擬粒子の比重 アルミナ粒子: 3.598

黒鉛ビーズ: 1.485

$\rho_2$ : オーバーコート部の比重 (1.765)

$V_f'$ : 模擬粒子のオーバーコート球に対する容積比

で求められ、その計算結果は下記のようになる。

模擬粒子	充填量 (v/o)	オーバーコート球の比重 (計算値)
アルミナ粒子	20	2.132
黒鉛ビーズ	20	1.709
〃	30	1.681

これより、模擬粒子とオーバーコート材に比重差が少ない黒鉛ビーズの場合、このオーバーコート球の比重も母材とほぼ等しいため、この方法によりオーバーコート球の中に含まれる粒子核の有無を判定するのは困難である。比重の差が大きいアルミナ粒子では核の効果が明確に示されるため、所定の粒子充填量を得るのには最も効果的な手段であると思われる。したがって高温ガス炉用燃料粒子の場合、その比重は約3.8(70NC3)であり、この方法はオーバーコート球中の核の有無、充填率のコントロールに有効な方法であると思われる。

コンパクトの熱処理(1400℃, 18.5 hrs)後、焼きしまりによる寸法収縮が起った。これらの試料の最終焼成は温度1800℃に加熱された電気炉の部分を通させる方式で行っており、この熱処理温度に対して可成り高温で行なわれている。また焼成条件から見て有機物バインダーの炭化は一次焼成(800℃)、二次焼成(1300℃)の過程で大部分が完了しているものと思われる。そして、1800℃では炭化は完全に終了し、炭素原子配列の整理と結晶成長が主要な黒鉛化過程になってくる。しかしこの最終焼成は1800℃に加熱された炉の部分を通させる方式のため時間的に短かく、このような炭化や黒鉛化の反応が充分に進まなかったものと思われる。一方1400℃, 18.5 hrsの熱処理では有機物バインダーの炭化温度にも充分である上、時間的にも長く充分な炭化反応が行なわれたものと思われる。

## 5. 結 論

燃料コンパクトの調製に対し、ラバープレス法の適用の可能性を調べるため、分散粒子として被覆燃料粒子ではなく、黒鉛ビーズとアルミナ粒子とを用いラバープレスによるコンパクトの調製を行なった。その結果以下のことが判明した。

1. 一軸的に加圧する金型プレスに対し、ラバープレスは無限多軸的な加圧法であるため成形体全体に均一な圧力が加えられ、高密度で均質な成形品が得られる。
2. 成形体が均質であるため、焼成による歪が少なく均一に収縮する。
3. 金型プレスでは成形体の径方向に対して長さが限定されるがラバープレスでは周囲より均一に加圧するためより長い成形体を調製できる。
4. 表面を機械加工で仕上げをするので製品の寸法精度が良くなる。
5. クラッド部を厚くすることにより、黒鉛スリーブを兼ね得る。

Table 1 Raw materials for dummy fuel compacts

Materials	Properties	Supplied by
Carbon beads	Particle size: 300 $\mu$ Tap density: 1.4 g/cm <sup>3</sup>	Kureha Kagaku Co.
Alumina particles	Particle size: 940 $\mu$ Density: 3.6 g/cm <sup>3</sup>	Nishimura Kogyo Co.
Graphite flour	Artificial graphite Particle size: <30 $\mu$	Nippon Carbon Co.
Binder	B resin	Ditto

Table 2 Samples and preparation conditions of fuel compacts

Samples	Particles dispersed	Particles loading (v/o)	Binder (w/o)	Compacting pressure (Kg/cm <sup>2</sup> )
71CP10A	Carbon beads	20±2	25	200
71CP30A	Carbon beads	30±2	25	200
71CP40A	Alumina parti	20±2	25	200

Table 3 Measurement of dimension, density and electric resistivity of fuel compacts pressed at 200 Kg/cm<sup>2</sup>

Samples Impreg- nation	Rubber pressed compacts			Mold pressed compacts			
	Diameter (mm)	Density (g/cm <sup>3</sup> )	Electric resistivity ( $\Omega$ cm)	Diameter (mm)	Density (g/cm <sup>3</sup> )	Electric resistivity ( $\Omega$ cm)	
None	71CP10A	24.03	1.592	350x10 <sup>-5</sup>	24.48	1.514	515x10 <sup>-5</sup>
	71CP30A	24.03	1.593	332x10 <sup>-5</sup>	---	---	---
	71CP40A	23.93	2.359	1097x10 <sup>-5</sup>	---	---	---
DVB	71CP10A	24.03	1.626	291x10 <sup>-5</sup>	24.39	1.581	259x10 <sup>-5</sup>
	71CP30A	24.04	1.614	336x10 <sup>-5</sup>	---	---	---

Table 4 Measurement of propagation time (u sec) of ultrasonic wave across the diametrical position

Pressing method	Samples	Length from top face of compact (mm)					
		3	9	16	22	29	36
Rubber	71CP10A	24.0	24.0	23.9	24.0	24.1	24.4
	71CP50A	26.0	26.5	26.6	26.7	26.3	26.1
Metal die	71CP10A	22.0	21.8	21.3	20.8	20.7	20.7
	71CP50A	22.6	21.9	21.5	21.2	22.0	21.6

Table 5 Dimensional change of fuel compacts after heating

Samples	Diameter (mm)	Weight (g)	Density (g/cm <sup>3</sup> )
71CP10A-5	24.009 (24.02)	26.0953 (26.117)	1.61 (1.59)
71CP30A-15	24.033 (24.04)	25.817 (26.162)	1.58 (1.59)

Note: Figures in parentheses are the ones for the samples as-received. Heating was done at 1400°C for 18.5 hrs in Ar atmosphere.



Over-coated dummy fuel particles

Graphite granules for clad

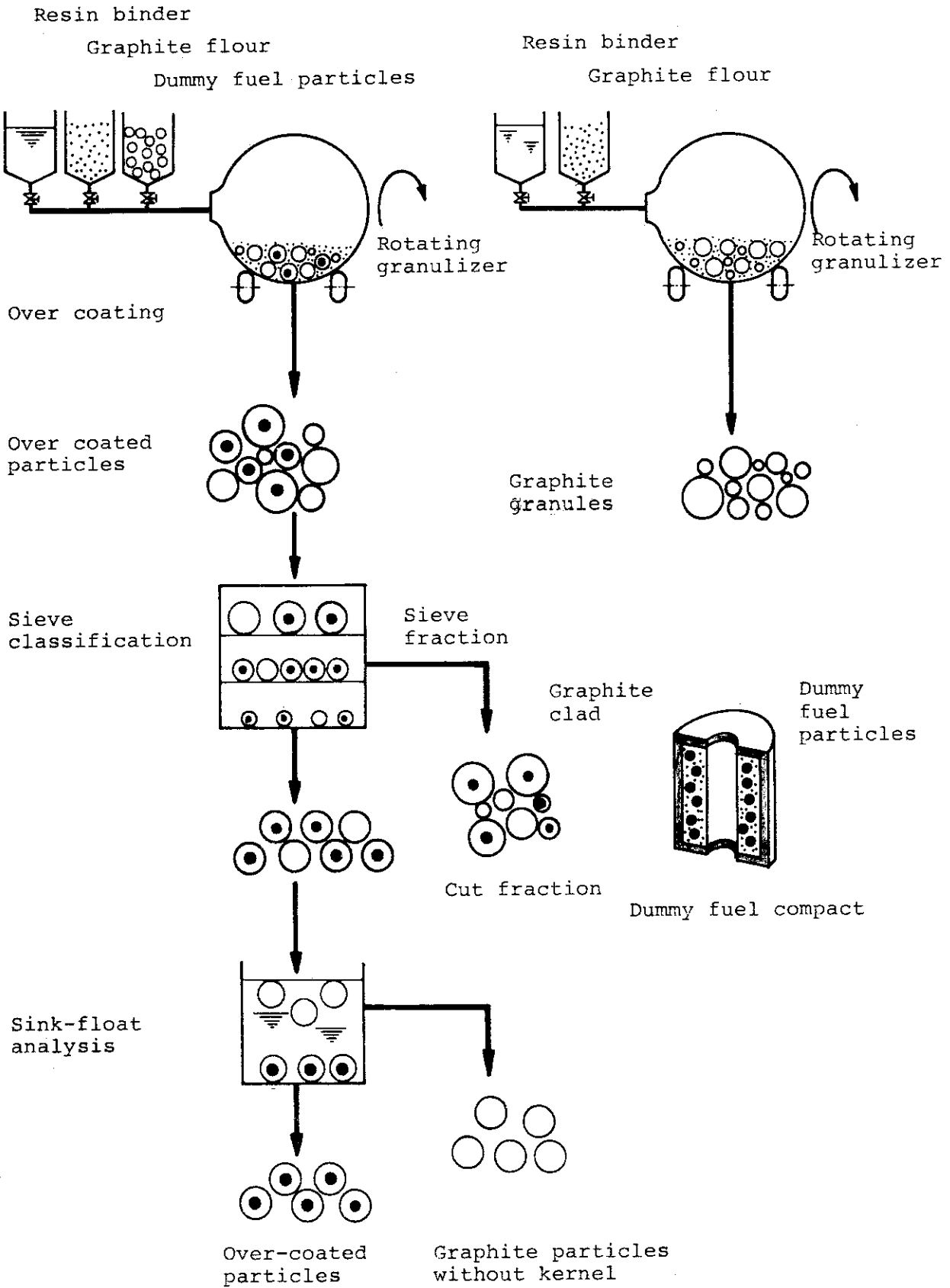


Fig. 1 Flow diagram of over-coating method

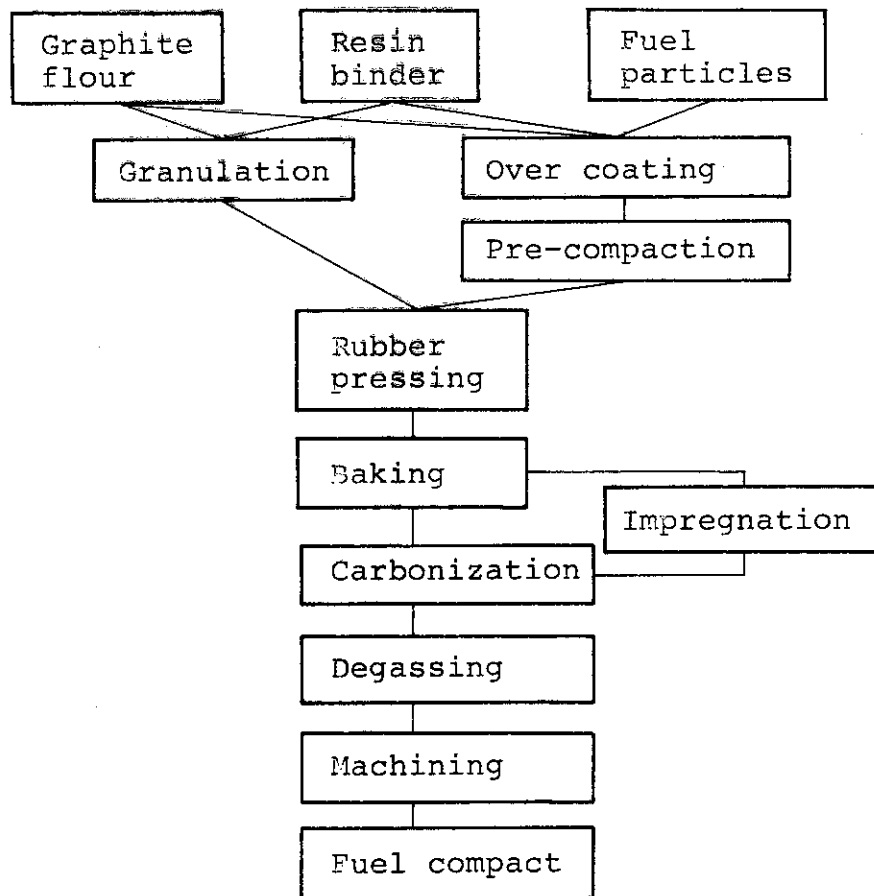


Fig. 2 Flow diagram for the preparation of fuel compact by rubber pressing

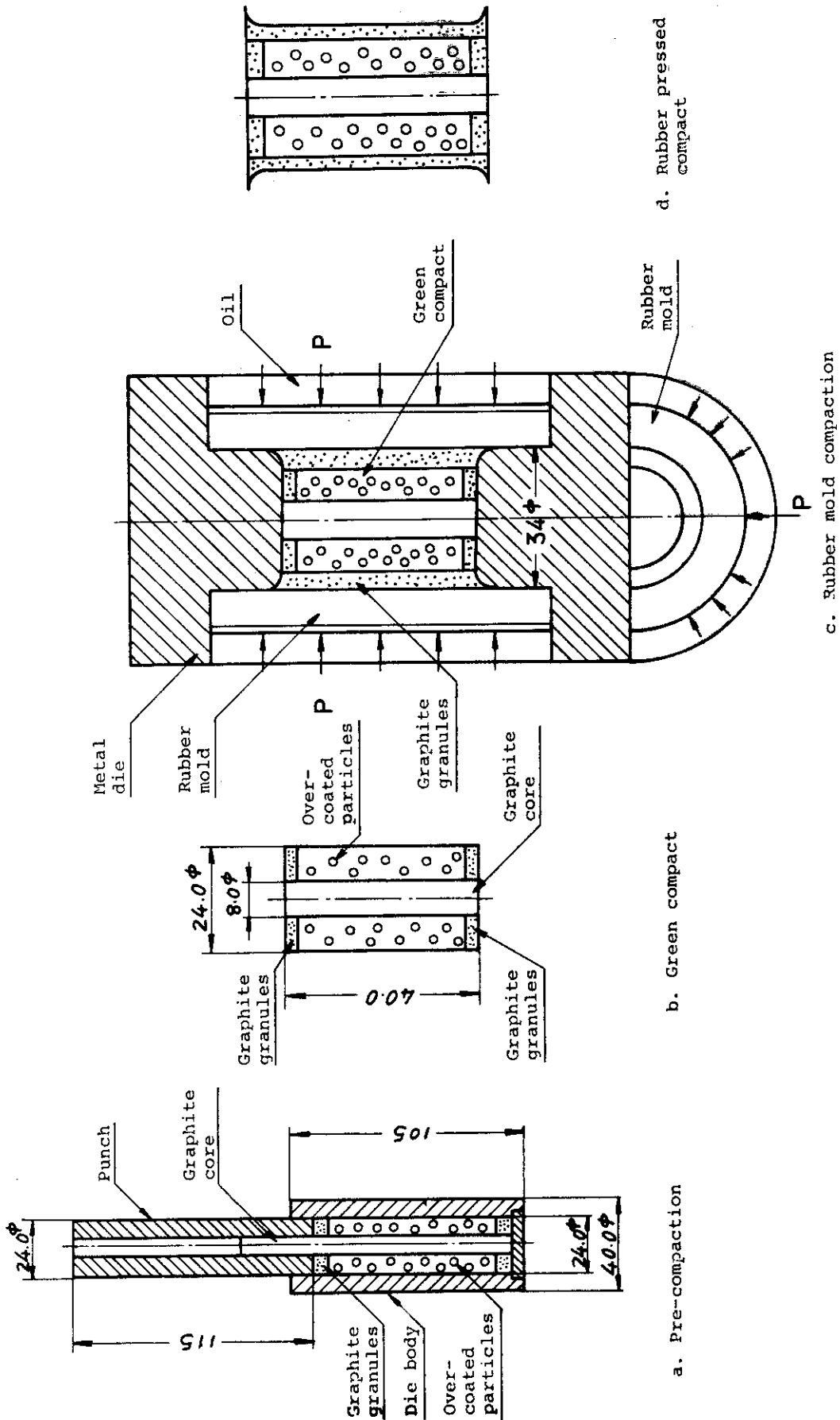


Fig. 3 Procedure for preparation of fuel compact by rubber pressing

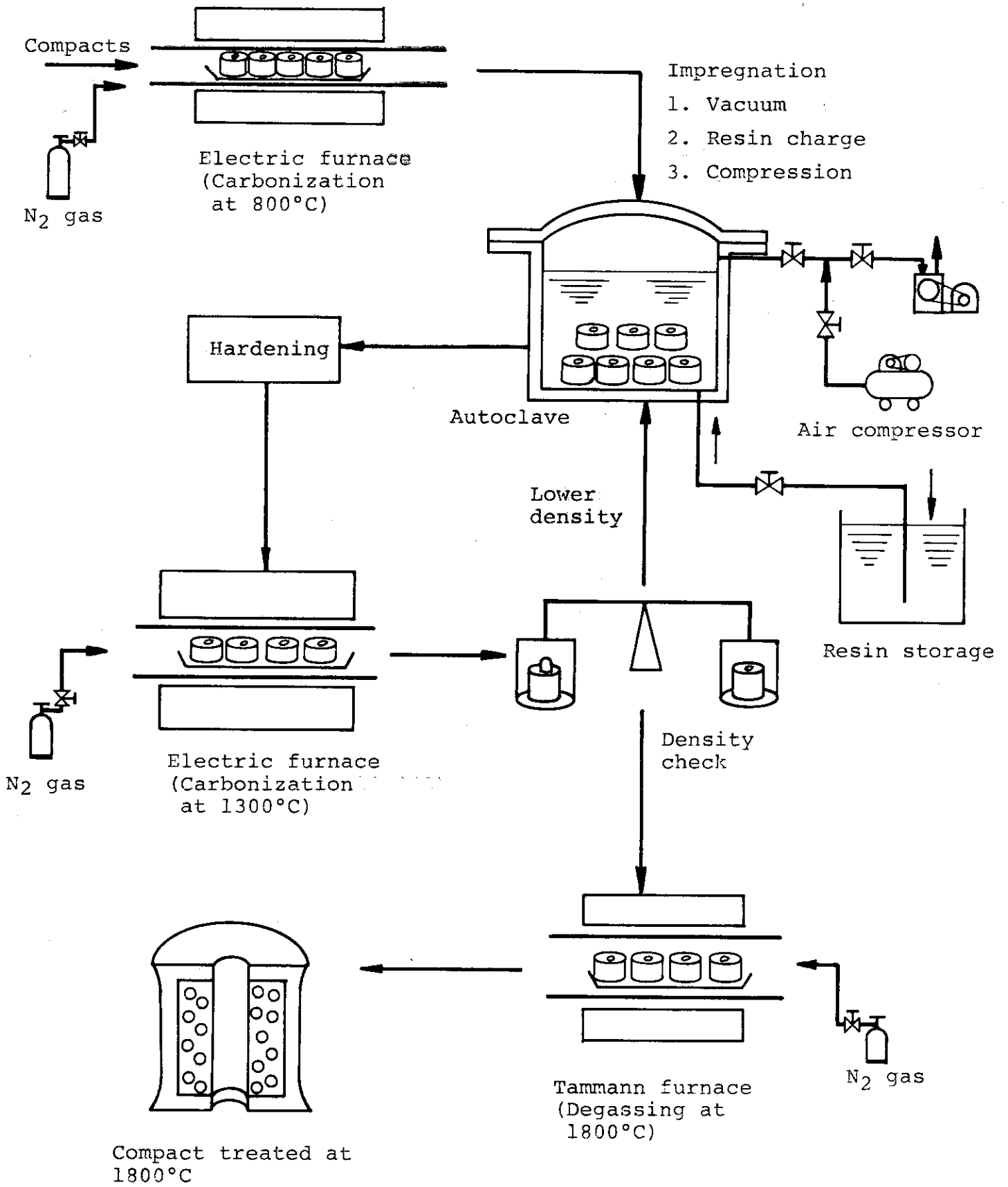
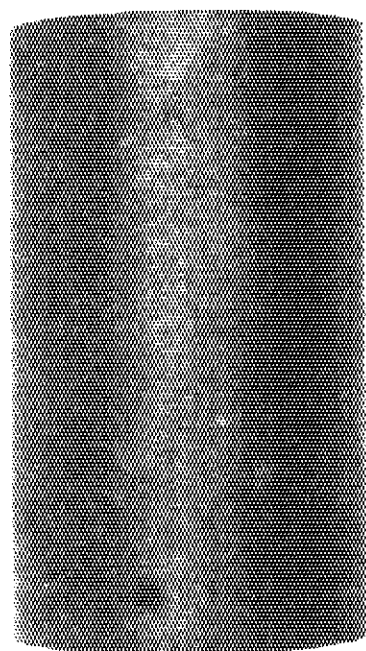
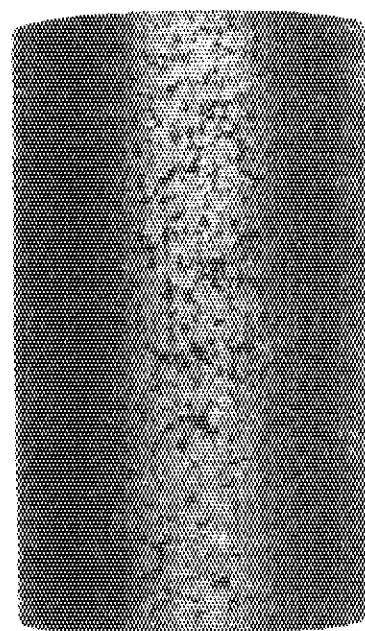


Fig. 4 Heat treatments and impregnation of compacts

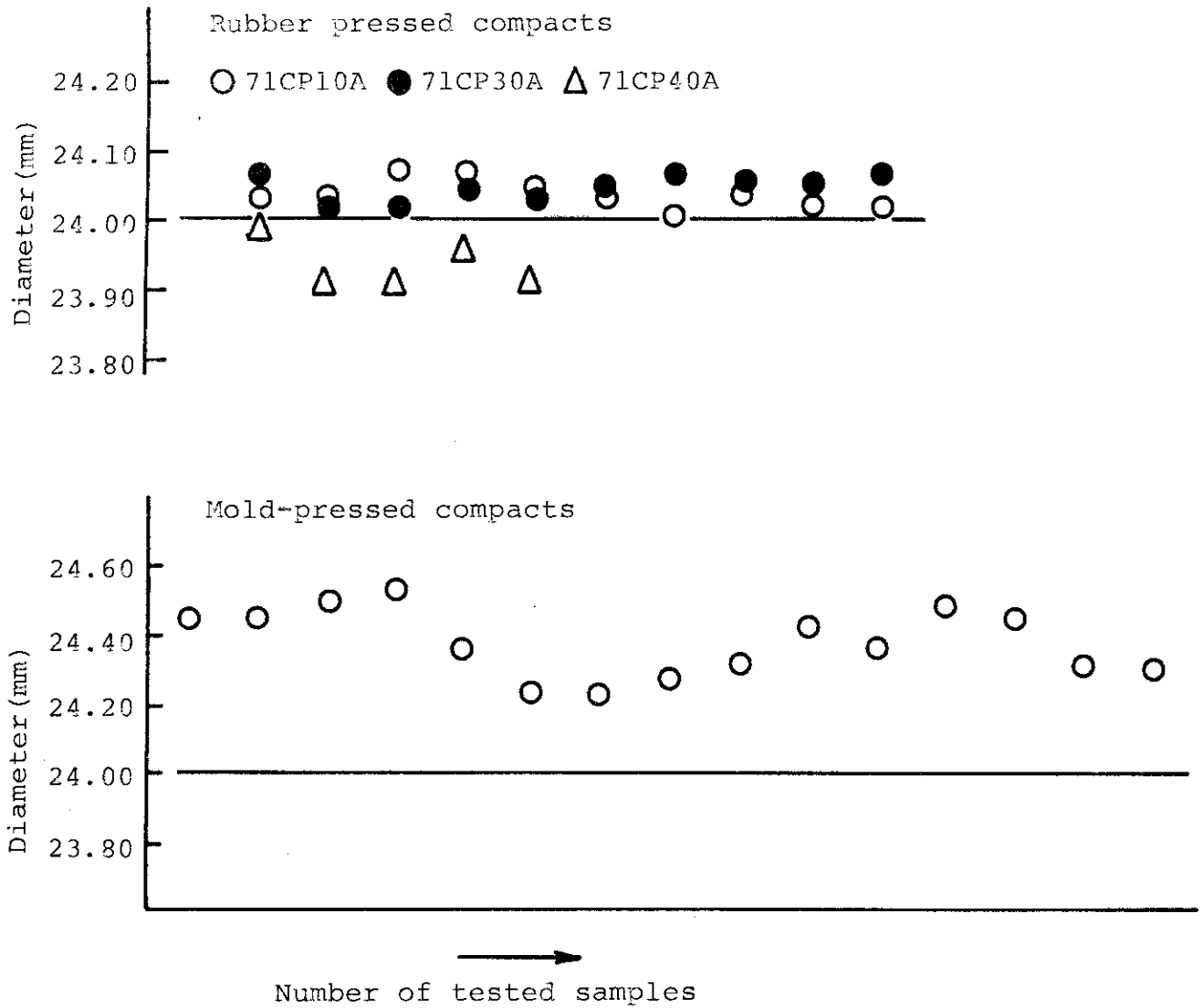


Rubber pressed compact



Mold pressed compact

Fig. 5 Photographs of dummy fuel compacts



Press method	Samples	Diameter (mm)	Standard deviation (mm)
Rubber	71CP10A	24.03	0.02
	71CP30A	24.04	0.02
	71CP40A	23.93	0.03
Metal die	71CP10A	24.41	0.07

Fig. 6 Dimensional accuracy and deviation of dummy fuel compacts

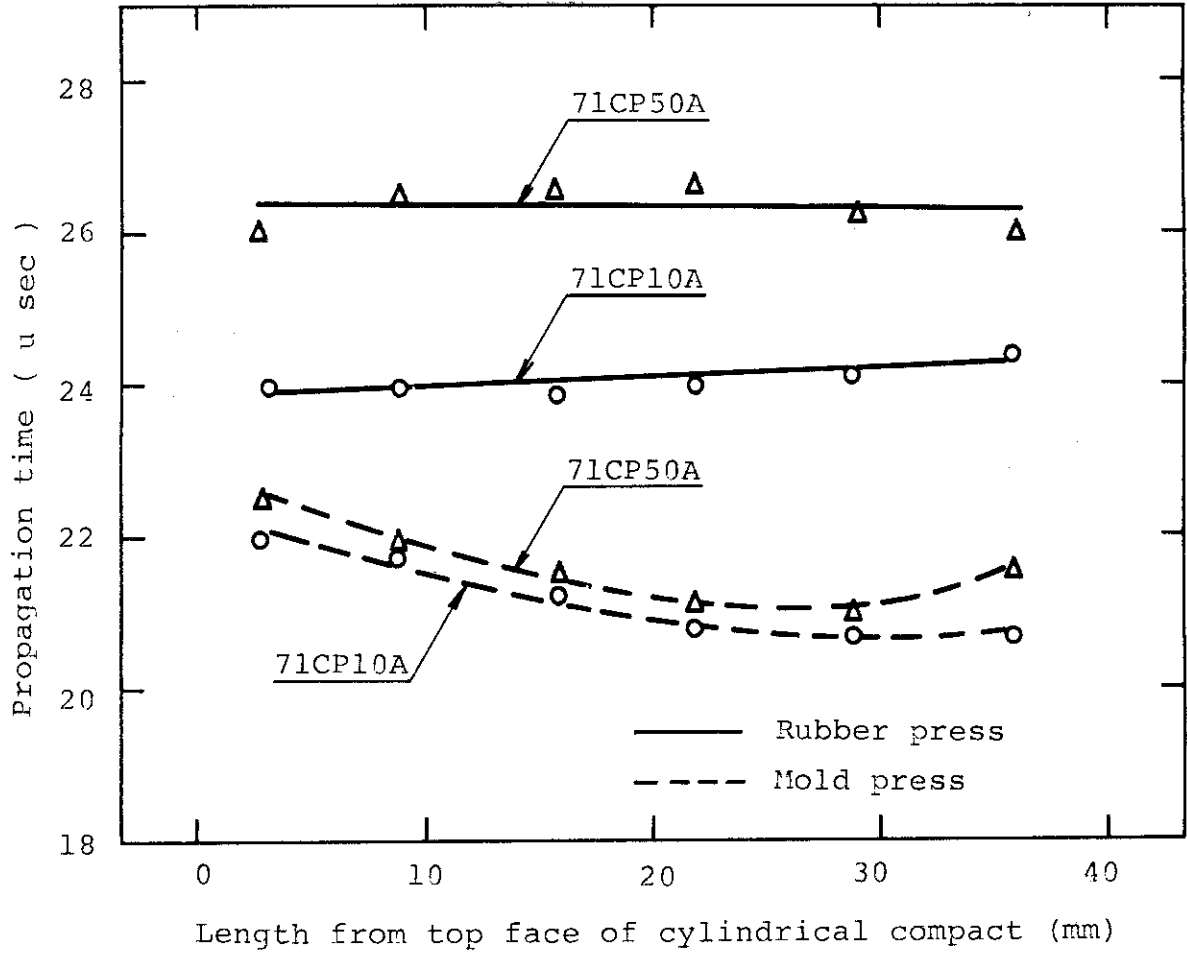


Fig. 7 Measurement of propagation time of ultra sonic wave across the compact

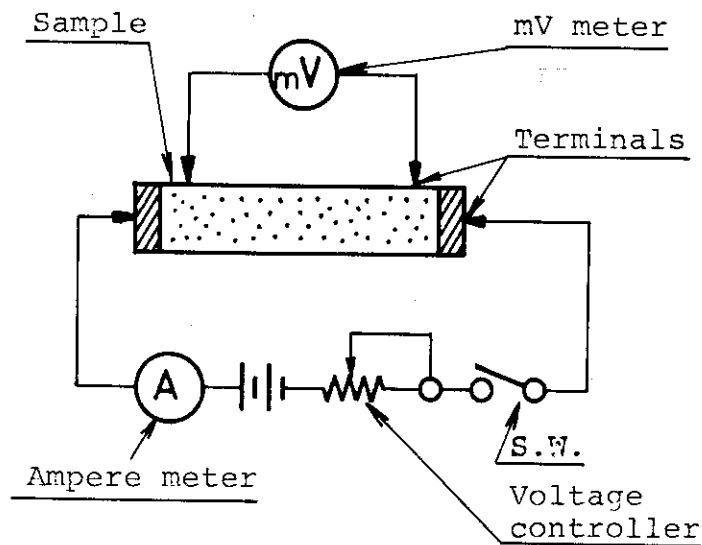
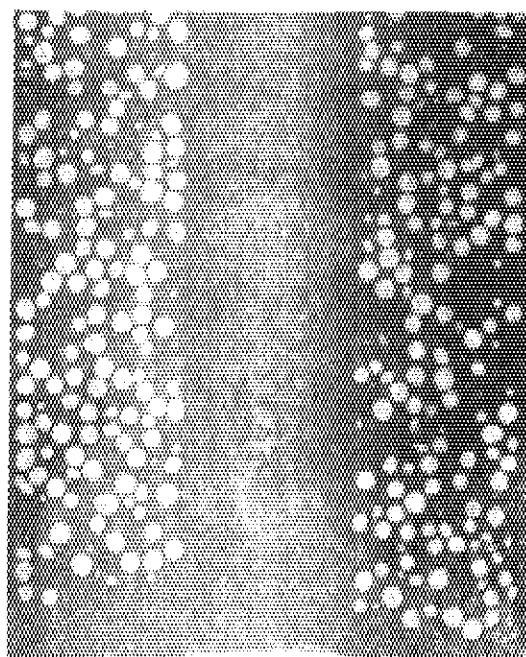
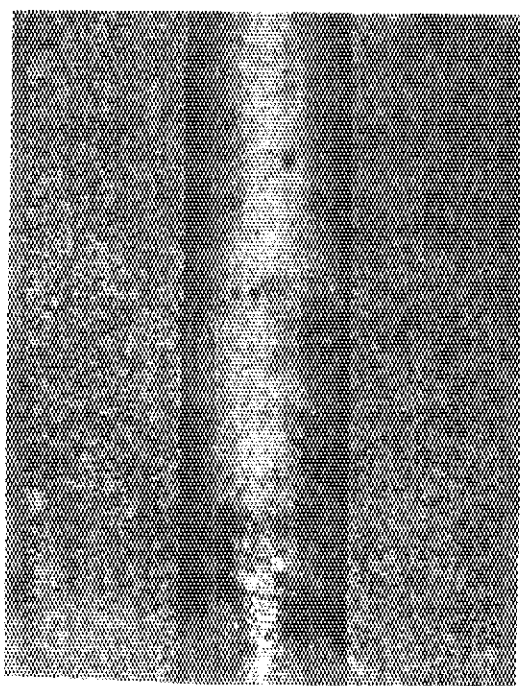
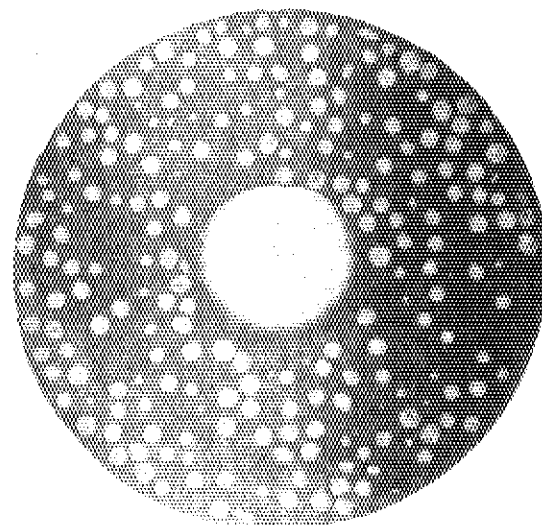
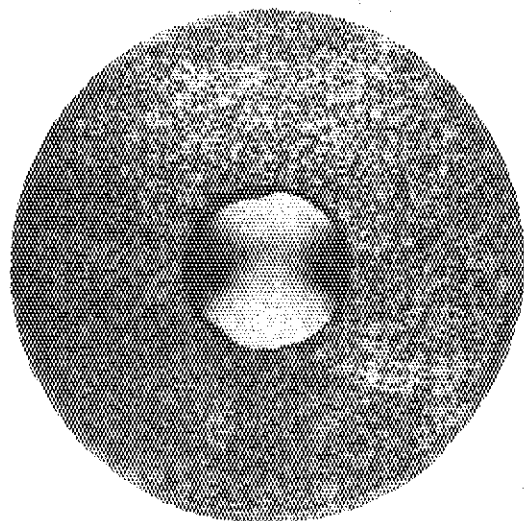


Fig. 8 Schematic diagram of the apparatus measuring electric resistivity of fuel compact



71CP10A

71CP40A

Fig. 9 Photomicrographs of dummy fuel compacts formed by rubber pressing



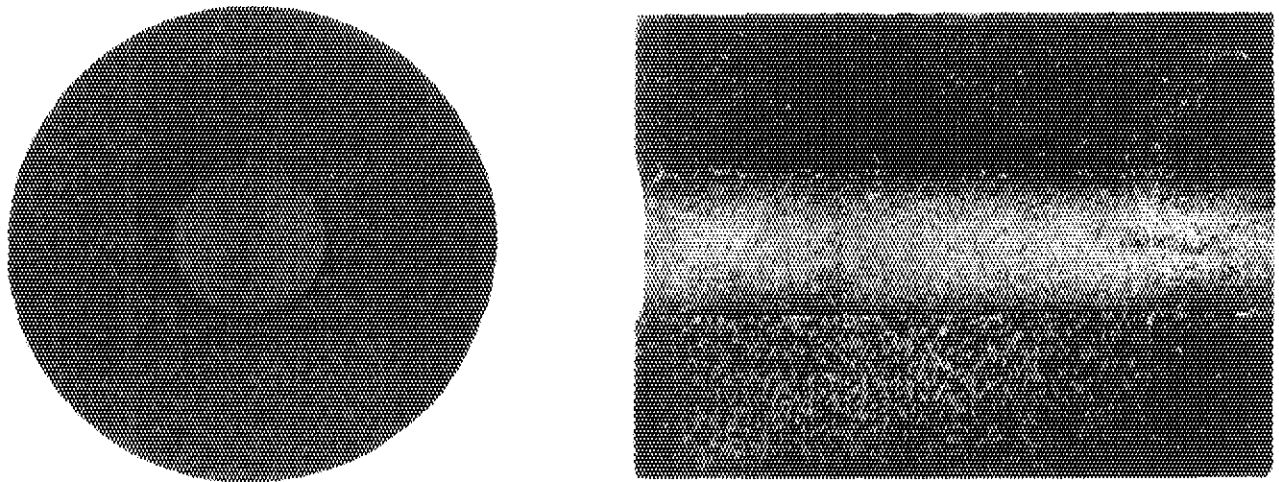


Fig. 10 Photomicrographs of dummy fuel compact after heating at 1400°C for 20 hrs

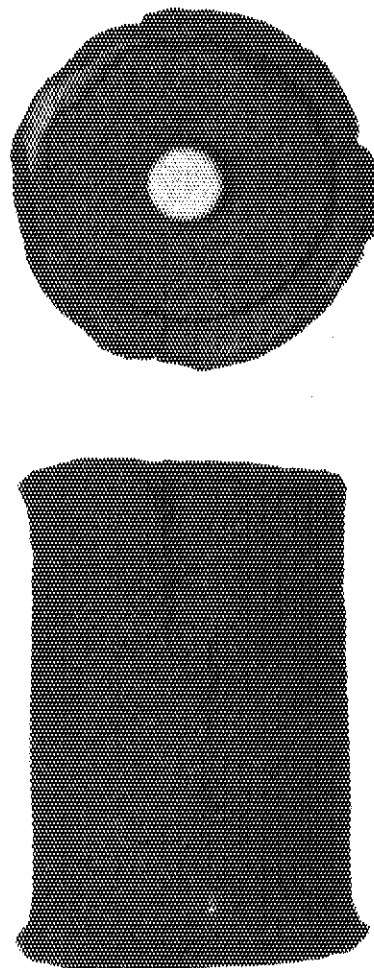


Fig. 11 Failed dummy fuel compacts by heating during preparation