

# FBR燃料用中空ペレットの製造試験報告

1984年2月

動力炉・核燃料開発事業団  
東海事業所

この資料は、動燃事業団の開発業務を進めるため、特に限られた関係者だけに配布するものです。については供覧、複製、転載、引用等を絶対に行なわないよう厳重に管理して下さい。なお、開示制限が解除になった場合は、その旨通知しますが、それ以前に関連業務が終了した場合は直ちに返却して下さい。

開示制限  
PNC ZN843-84-02  
1984年2月

## FBR 燃料用中空ペレットの製造試験報告

実施責任者 横内洋二<sup>\*1</sup>  
報告者 衣笠学<sup>\*1</sup>  
山本純太<sup>\*1</sup>  
雪隆司<sup>\*1</sup>  
鈴木満<sup>\*1</sup>  
茂呂清隆<sup>\*2</sup>

期間；1983年2月～1984年2月

目的；FBR燃料用中空ペレットの量産製造のための成形技術の確証試験を行った。

要旨；一軸乾式金型成形機（ヨシヅカ社製 PCH-15 SU型）を用いて、量産時と同様の自動充填機構によりFBRタイプの中空ペレットの成形試験を行い、以下の結論を得た。

- ① 現有の乾式成形機を用いて、約  $1.7 \phi$  mm の中空径を有する焼結ペレットは、量産可能である。又、ペレットの長さと外径の比 (L/D) は 3 が限界であった。
- ② 中空ペレットの成形では、造粒粉末の管理を充分に行う必要があると共に、バインダー及びルブリカントの添加率は中実ペレットの成形よりも多い方が良好な結果が得られる。
- ③ コアロッドの設計にあたっては、座屈限界を充分に解析しておかないと、成形時に破損する場合がある。又、その材質は剛性の高いものよりも、韌性の高い素材の方が良い結果が得られた。

---

\*<sub>1</sub> プルトニウム燃料部設計開発課

\*<sub>2</sub> プルトニウム燃料部設計開発課（検査開発）

## 目 次

1. 諸 言 .....	1
2. 試験方法 .....	2
2.1 試 料 .....	2
2.2 試験方法 .....	2
2.3 成形装置 .....	4
3. 試験結果 .....	10
3.1 成 形 性 .....	10
3.2 ペレットの寸法密度及び外観 .....	10
4. 考 察 .....	14
4.1 成 形 性 .....	14
4.2 成形用ダイスの設計 .....	17
4.3 中空径について .....	21
5. 結 論 .....	24
6. 今後の展開 .....	25
7. 謝 辞 .....	27

## 参考資料

; コアロッドの座屈解析 .....	29
--------------------	----

## 1. 諸 言

近年、高速炉に装荷する燃料として中空形状の高密度ペレットが注目されている。高速炉の出力上昇に併い、燃料ペレットの温度も上昇していくが、従来の中実形状の燃料ペレットでは中心温度が融点に近づくため、高速炉の初期出力上昇に制限が出てくる。

これに対し、中空形状の燃料ペレットを用いた場合、中空部の温度向配分だけ中心温度の低下が図れるという利点がある。又、燃料ペレットの密度も90% T. D. 以上になるため、低密度のものよりも熱伝導度が良くなる。一方、低密度の中実ペレットは内部のポアによってスウェーリングが緩和されるが、中空ペレットも中心孔によるスウェーリング緩和効果が期待できる。

これらのことから、FBR 燃料として従来の低密度の中実ペレットに代わる、高密度の中空ペレットの開発を考えられていた。しかし、対象とする燃料ペレットは約 5.4 Ø mm の外径に対し、約 2 Ø mm の中空部を有する構造となるため、以下の様な問題点があった。

- ① 成形時のダイス強度
- ② 自動連続成形時の粉末充填性
- ③ ペレットの L/D 比がどこまでとれるか
- ④ ペレットの肉厚が薄くなるための焼成時の変形率の増化

本試験では特に成形性に重点を置いて、中空ペレットの量産性の確証試験を実施した。又、本試験で得られた知見を「計装線付 C 型特燃要素」(INTA) 用ペレットの製造に反映させる。

## 2. 試験方法

### 2.1 試料

試料は二酸化ウラン原料粉（天然ウラン）を800°Cで1時間、空気中で焙焼し、さらに3時間、5% H<sub>2</sub>-95% N<sub>2</sub>混合ガスで還元した粉末を用いた。

### 2.2 試験方法

熱処理した試料をボールミルにて6時間の粉碎を行ったのち、ルブリカントの添加を行った。添加率は0.3, 1.0 wt%の2水準に分け、各々仮成形し、20メッシュアンダーに解碎整粒して試料調整を行った。

成形はウィズドロー方式の自動成形機（ヨシヅカ社製PCH-15SU型）を用いた。成形圧力は2.5～3.0 ton/cm<sup>2</sup>に設定し、粉末の充填深さを19～55mmの範囲で4水準に分け成形した。これによってグリーンペレットのL/D比を変えることができる。充填は全て連続自動充填機構を用いた。成形条件の一覧を表1に示す。

グリーンペレットは800°Cで2時間の脱脂ののち、1650°C 2時間の焼成を行い、焼結ペレットに調製された。ペレットの調整フローを図1に示す。

表 1 成形条件一覧

条件 ロット名	ダイス径 mm	上ラムスト ロークmm	充填量 mm	押出量 mm	成形圧 ton/cm <sup>2</sup>	圧縮停止 sec	圧縮比
H 10-19	6.00	33.30	19.09	10.24	2.7	1	2.38
	2.00						
H 10-25	6.00	31.34	23.02	10.24	2.7	1	2.31
	2.00						
H 10-35	6.00	26.63	35.19	18.92	2.7	1	2.35
	2.00						

ルブリカント添加率0.3 wt%の全ロット及び1.0 wt%で充填深さ55 mmのロットは成形不能のため表より除いた。

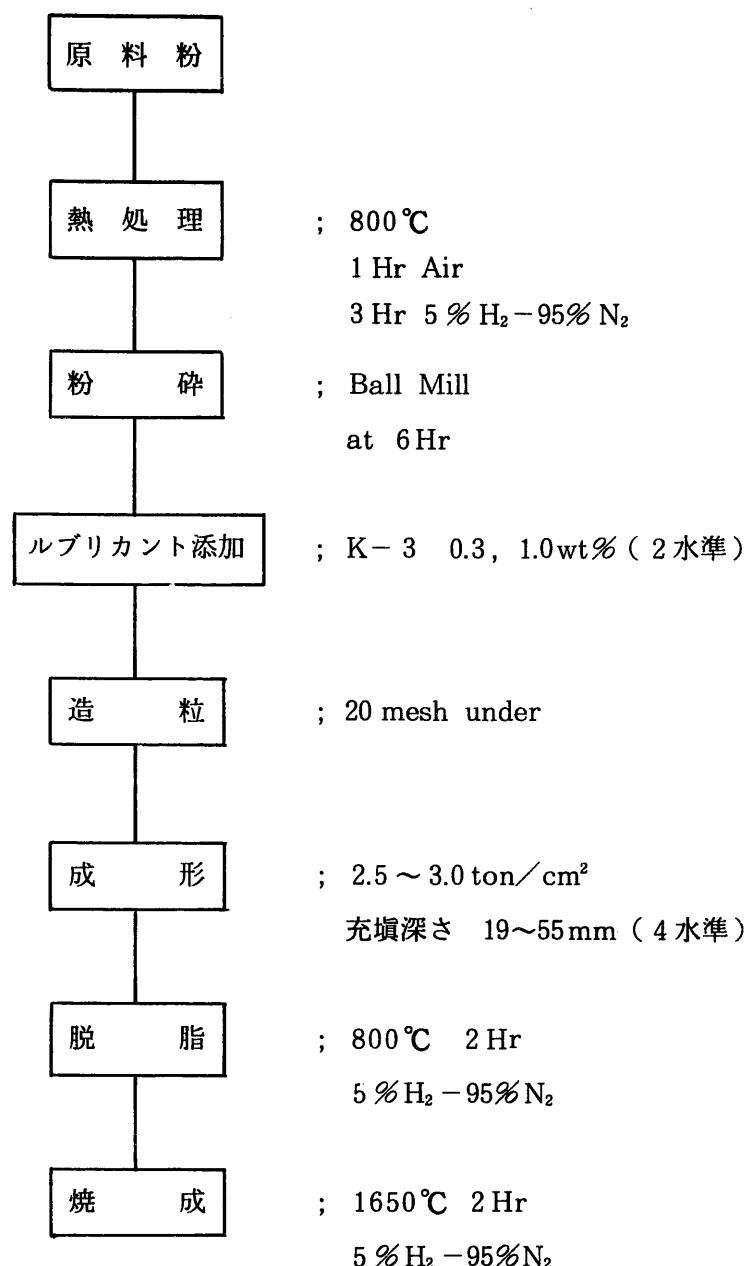


図 1 ペレット調製フロー

### 2.3 成形装置

試験に用いた成形装置の仕様を表2に示す。又、中空成形用のダイス及びコアロッドの設計図及び写真をそれぞれ図2及び図3に示す。

表2 粉末成形プレス仕様 (PCH-15SU型\*)

項目	仕様
成形方式	ウィズドロー
最大加压力	15000 kg
最大押出力	12000 kg
ダイ受压力	10000 kg
上ラムストローク	130 mm
上ラム調整量	40 mm
最大粉末充填深さ	60 mm
最大加圧ストローク	30 mm
最大押出ストローク	30 mm
成形速度	10~40個/分
一定加圧機構	有
アンダーフィルストローク	5 mm
上パンチエアクッション量	75 mm
クラッチ・ブレーキ	コンビネーションエアクランチ

\* ; ヨシヅカ産業(株)製

G △△△(△△,△△△△) LP

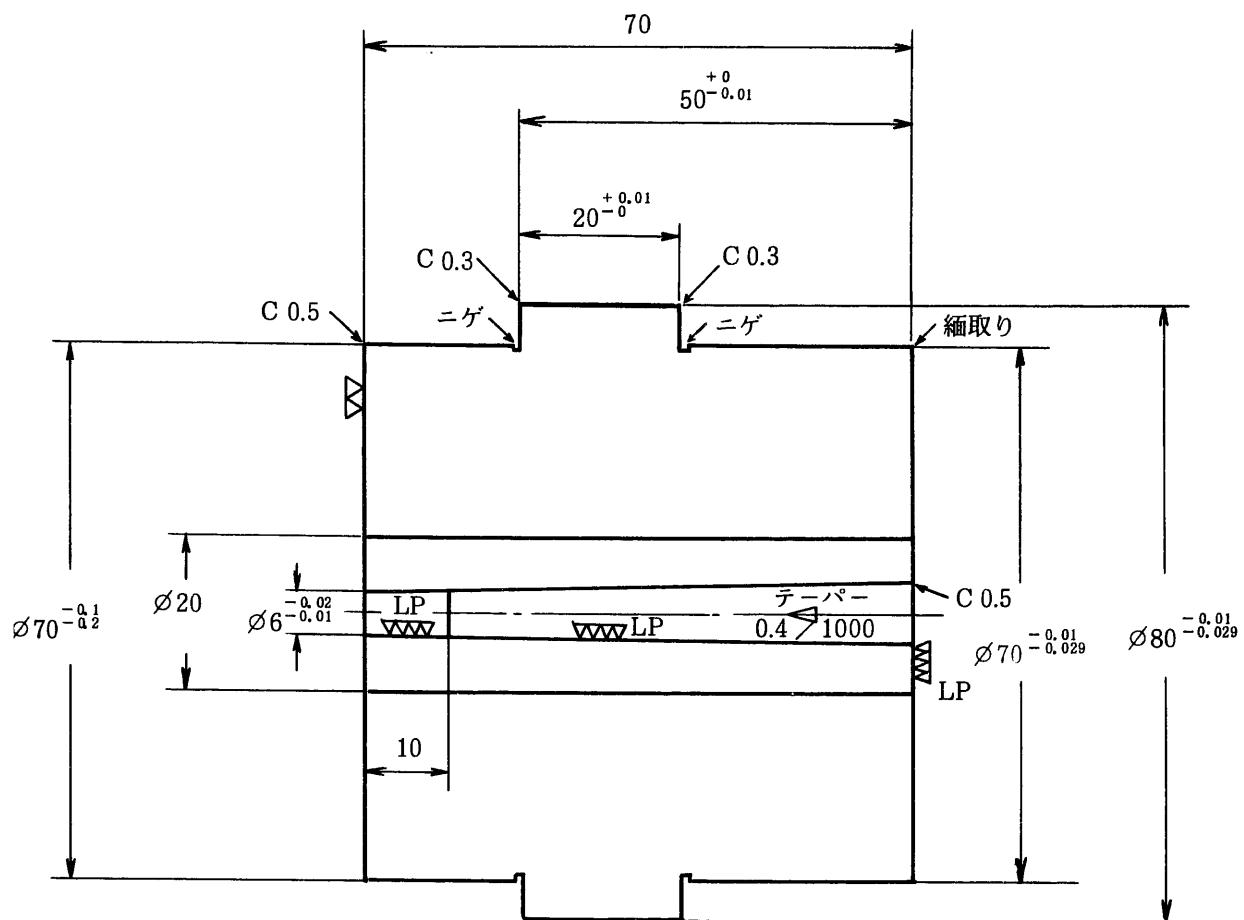


図 2-1 中空ペレット成形用金型  
(ダイ)

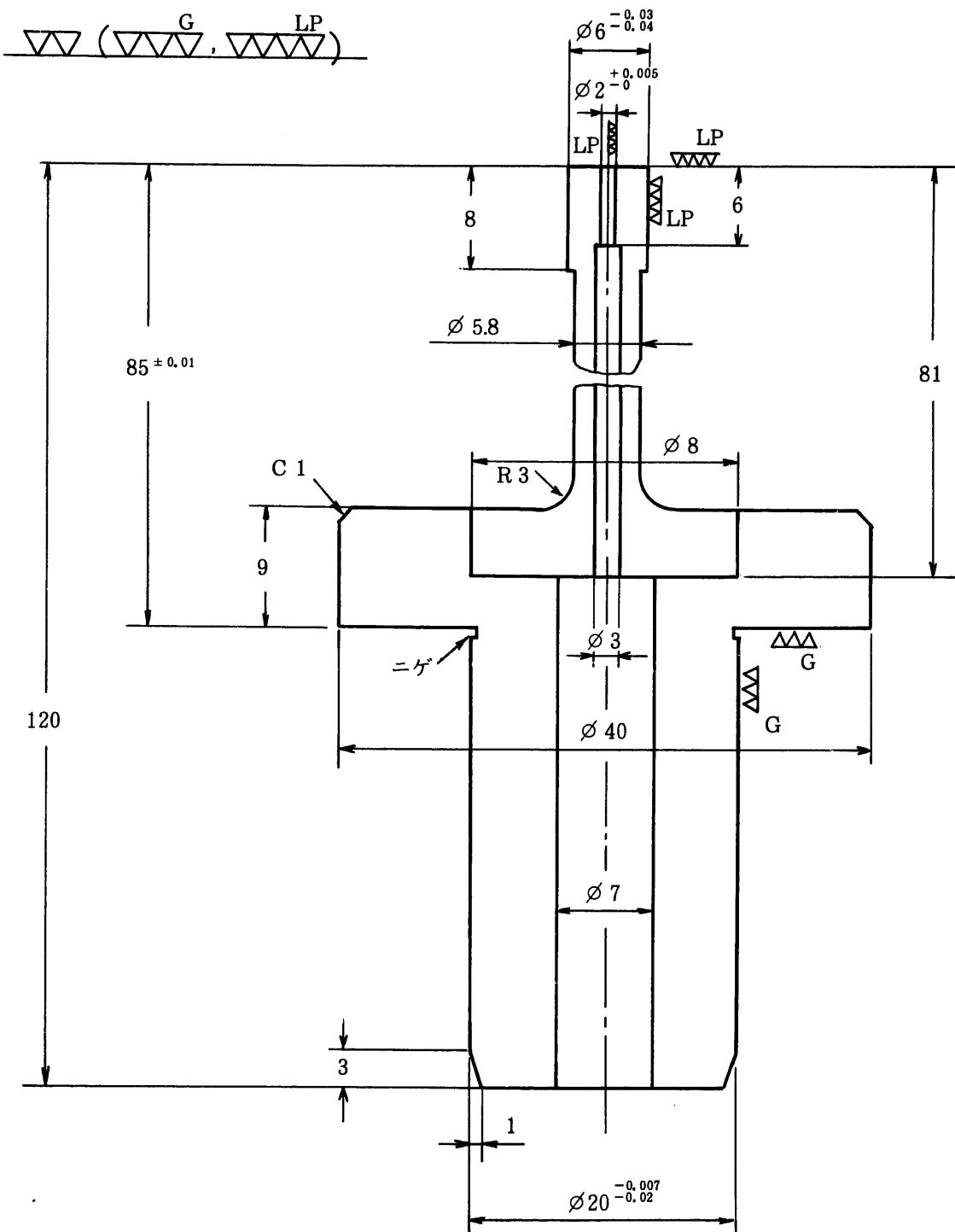


図2-3 中空ペレット成形用金型

(下パンチ)

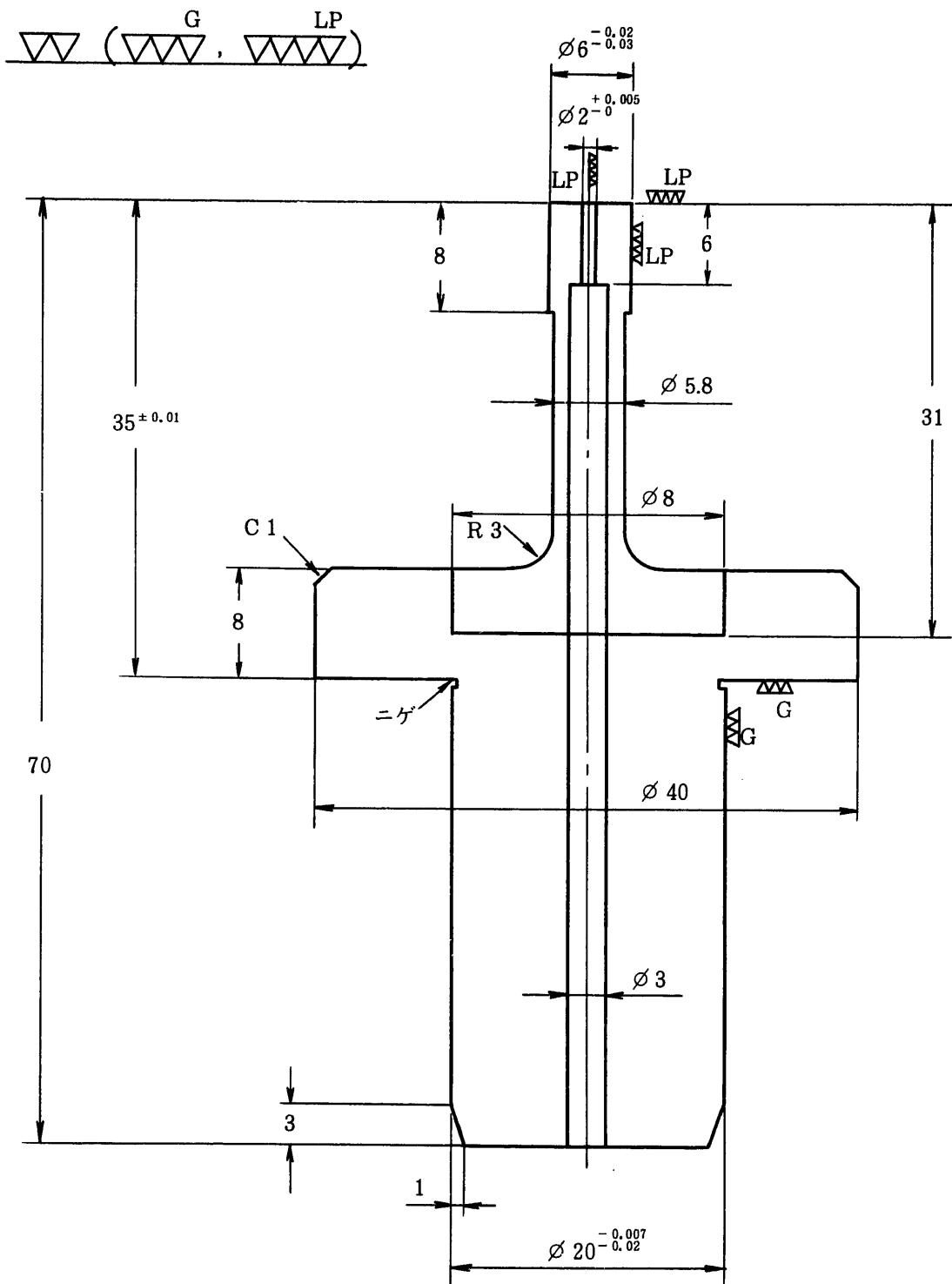


図2-2 中空ペレット成形用金型

(上パンチ)

シヤンク	SNCM 439	HRC 38
フジロイ	D 60	
品名	材質	備考

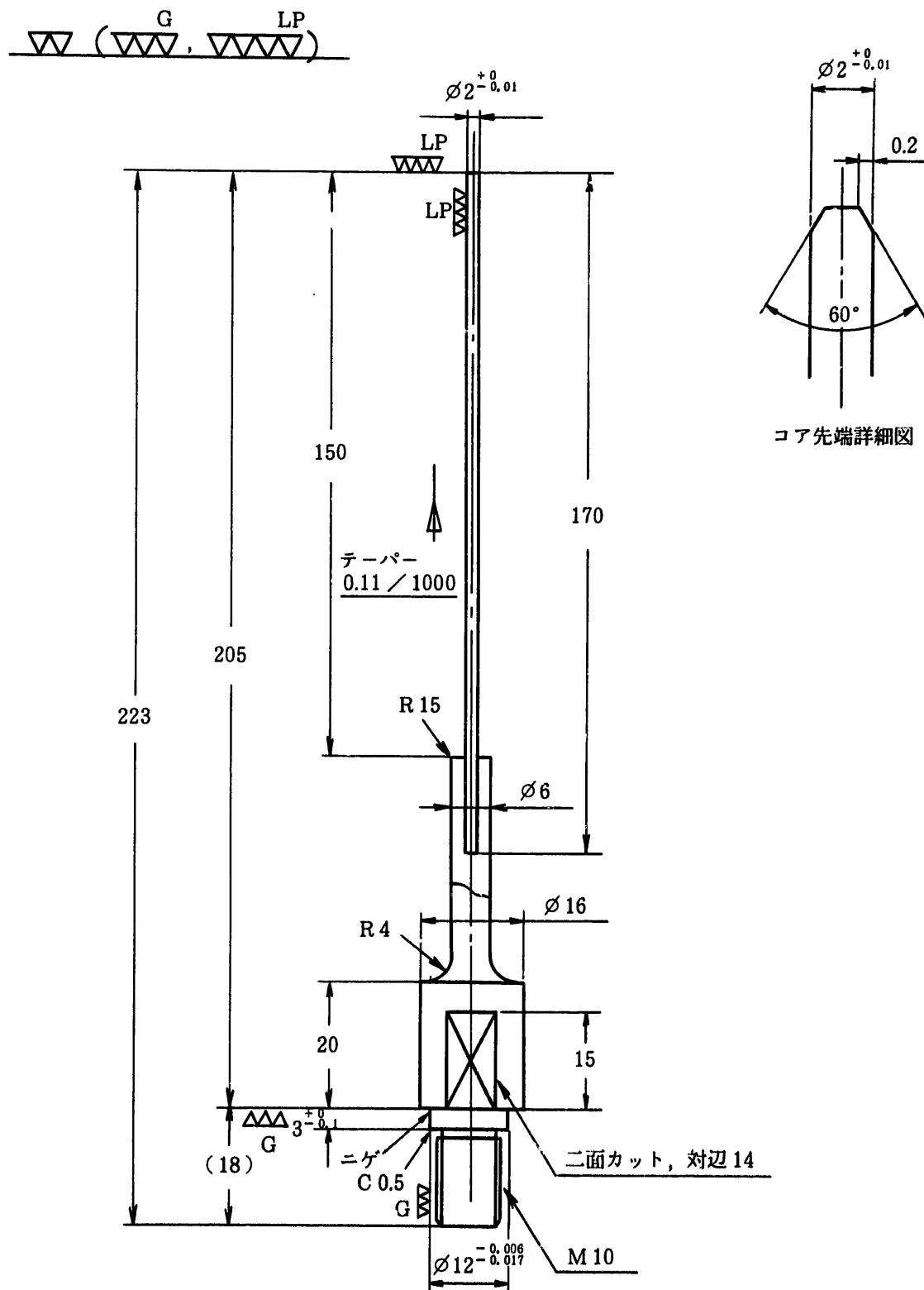


図2-4 中空ペレット成形用金型  
(コアロッド)

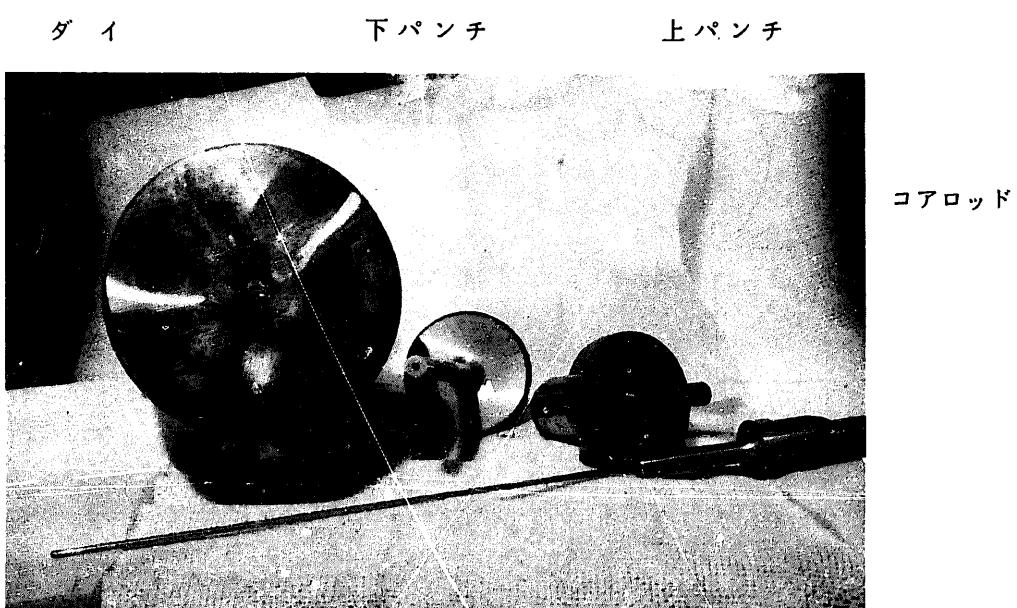


図3 中空ペレット成形用金型の外観

### 3. 試験結果

#### 3.1 成形性

充填深さを19~55 mmの範囲で変えても、造粒粉末のダイへの流れ込み状態は良好で、成形されたグリーンペレットの重量の偏差も0.005~0.009 gと少なかった。

成形性については、ルブリカント添加率が1.0 wt %のものは、中実ペレットと同様な成形体が得られたが、0.3 wt %添加のものには、図4に示すように極端なラミネーションが発生した。

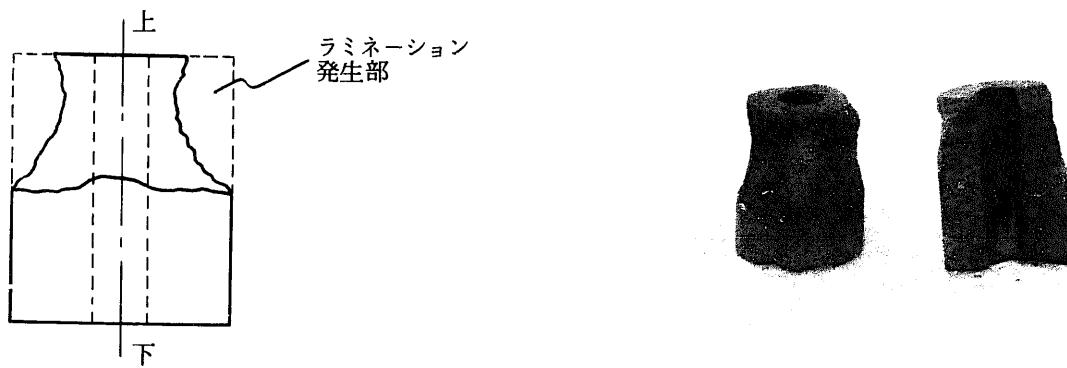


図4 成形体に発生したラミネーション

ラミネーションは成形体の上部外表面に発生したものが多く、中空部分には発生しない、このラミネーションは、成形圧力及び圧縮停止時間を変えても完全にはなくならなかった。明らかに粉末間の結合不足と思われるが、中実ペレットの成形は同質のルブリカントの添加率が0.3 wt %でも充分に可能であることから、粉末とコアロッドとの摩擦が影響しているものと考えられる。ルブリカント添加率を1.0 wt %に増し、良好なグリーンペレットが得られた場合の成形においても、適正なダイ下降速度を選ばないと、ダイ下降の抜き出し時に摩擦音が発生した。

又、充填深さを約55 mmに増して成形した際、成形加圧が始まると同時にコアロッドが破損した。

#### 3.2 ペレットの寸法密度及び外観

ルブリカント添加率1.0 wt %のロット(ロットNo. H10)について測定を行った。グリーンペレット及び焼結ペレットをそれぞれ表3、表4に示す。内径の測定はTESA社製の内径マイクロメーターを用いて測定した。

通常、ペレットのL/D比が大きくなると、成形時の粉末の軸方向圧力分布がかなり不均等と

なるため、上下加圧のバランスがとりにくくなり、従って焼結後のペレット歪は大きくなる。表4に示した様に、中空ペレットの焼結歪もL/D比が大きくなるにつれて増している。しかし、従来の中実ペレットの焼結歪と大きく異なる点はなかった。又、内径の歪は外径歪と対応していた。

グリーンペレットの外観を図6に示すが、比較に示した中実ペレットと外観は全く変わりはない。図7に焼結ペレットの外観を示すが、L/D比が大きく成形バランスがとりにくい場合に発生しやすいラミネーションクラックも見られなかった。

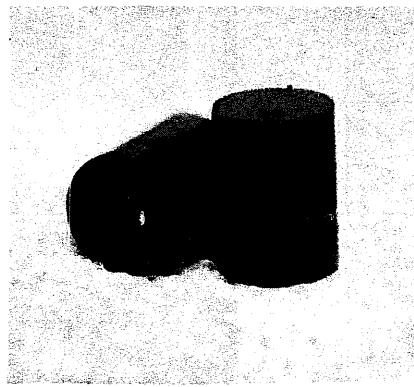
表3 グリーンペレット測定結果（ロットH-10）

ロットNo.	径 $\phi$ mm		高さ H mm	重量 g	密度 %T.D.
	外 径	内 径			
H 10 - 19	6.06	2.00	8.03	1.33	58.8
H 10 - 25	6.06	2.00	9.95	1.62	57.6
H 10 - 35	6.06	2.00	14.93	2.53	60.2

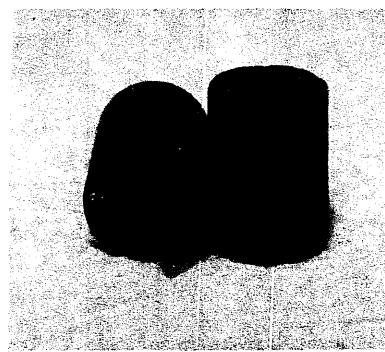
表4 焼結ペレット測定結果（ロットH 10）

ロットNo.	外 径 $\phi$ mm			内 径 $\phi$ mm			高さ H mm	重量 g	密 度 %T.D.
	上	中	下	上	中	下			
H 10 - 19	5.21	5.18	5.22	1.72	1.72	1.72	7.00	1.30	89.6
H 10 - 25	5.20	5.15	5.17	1.72	1.71	1.71	8.50	1.58	89.6
H 10 - 35	5.20	5.21	5.29	1.72	1.74	1.75	13.07	2.48	90.4

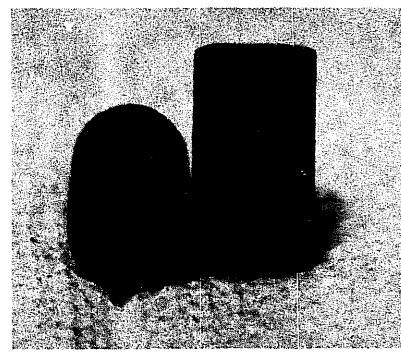
- 12 -



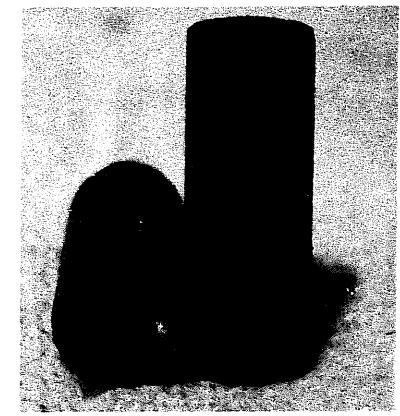
a) 中実ペレット



b) H10-19

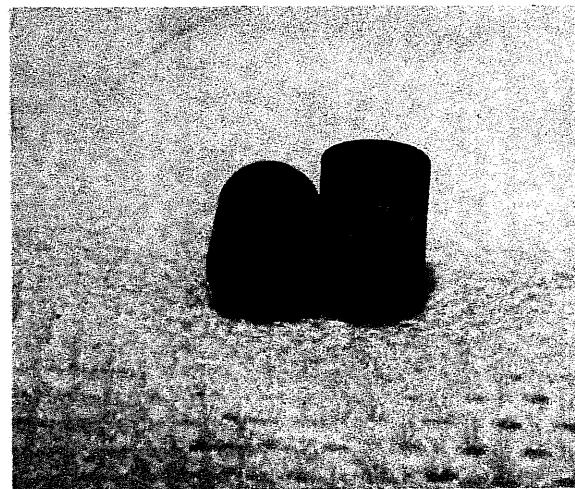


c) H10-25

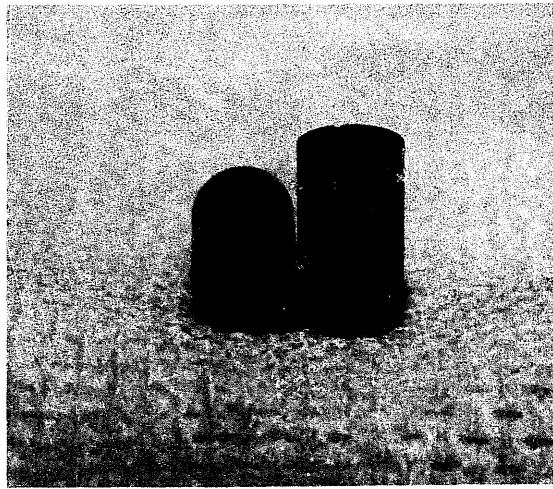


d) H10-35

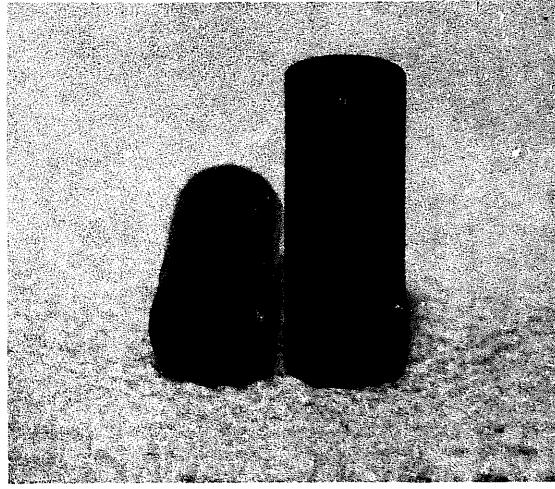
図5 グリーンペレットの外観



a) H 10 - 19



b) H 10 - 25



c) H 10 - 35

図6 焼結ペレットの外観

## 4. 考 察

### 4.1 成形性

#### 1) 成形体の圧力分布について

中実ペレットに対し中空ペレットの成形はコアロッドを用いているため、図7に示すように外圧の他に内圧が同時に粉末に加えられる。そのため、中空グリーンペレット全体としての密

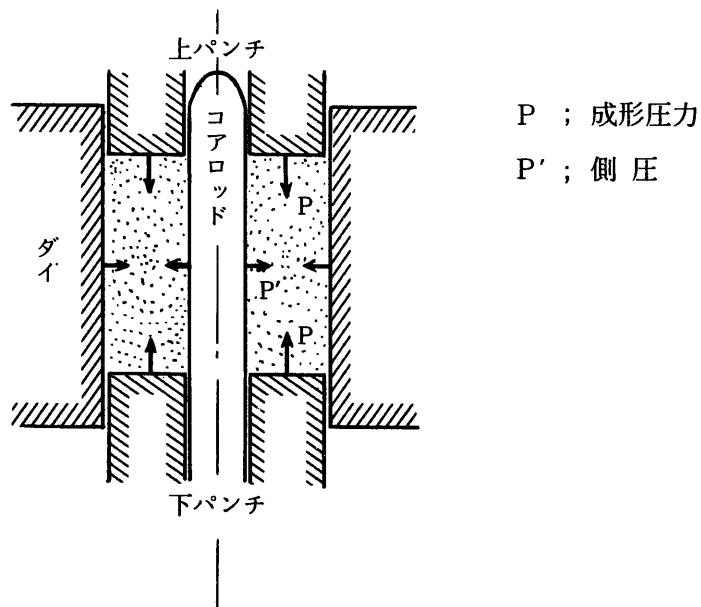
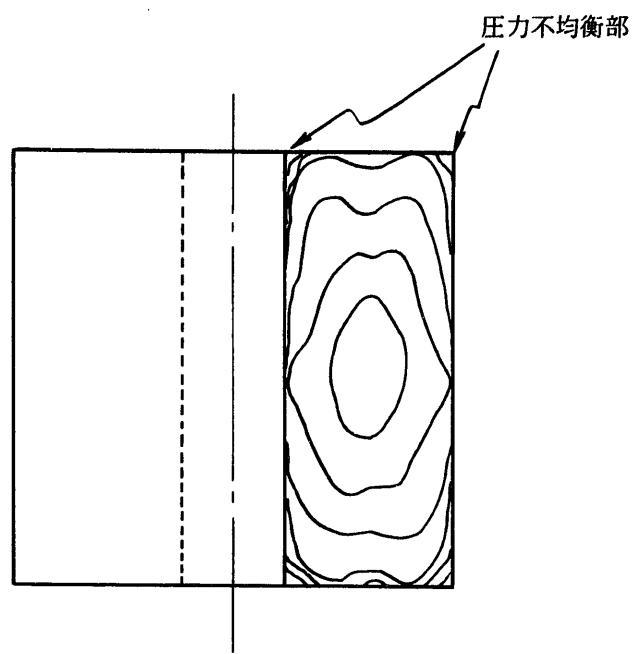


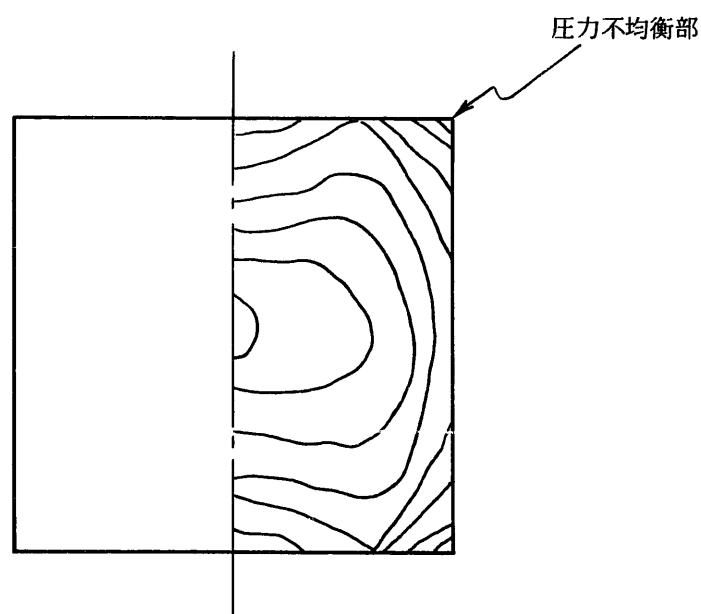
図7 成形時の加圧モデル

度は、同一成形圧で成形した中実ペレットよりも高くなると考えられる。しかし局部的には、中空コーナー部など圧力不均衡の生じやすい部位がふえ、そこからのマイクロクラックやキャッピングなどのラミネーション発生が予想される。（図8 参照）

圧力の不均衡は加圧時の粉末の流動性に大きく左右されるため、造粒粉の状態及びダイへの粉末充填状態が成形の重要なポイントとなってくる。又、中空成形では、ダイと粉末及び粉末間の摩擦を減らすと共に、圧力不均衡部のはく離を防ぐための、ルブリカントとバインダーの性状が中実成形以上に大切となる。



b ) 中空ペレット内部の等圧線図



a ) 中実ペレット内部の等圧線図

図8 ペレット内部の圧力分布

## 2) 充填性と造粒

前項で造粒粉末の性状と充填状況が成形のポイントであると述べた。まず造粒粉末の粒径については、最密充填を構成しやすいように造粒粉の1次球-、2次球等の粒度分布をコントロールする必要がある。今回用いた試料は20メッシュアンダーとしたが、100メッシュ(149 μm)以下の粒子はアンダーカットした方が成形体密度の偏差が少なくなることから、造粒粉粒径分布の調整方法は1次球と2次球のみの比率を検討すれば良いと考える。又、造粒以前の粉碎粉の性状も成形に影響を与えるが、今回の粉碎粉はかなり細かなもの(表5参照)であったが、その造粒粉は良い流動性を示していることから、成形時の充填性は主に造粒後の粒径分布とか平均粒径について検討すれば良いと考える。

成形体内に圧力不均衡が生じやすい成形の場合、粉末中の気泡を充分に逃がしておかないと、ラミネーションが発生する。粉末の脱気は造粒処理中の仮成形で行うが、それ以外に、粉碎後の凝集体中にとり込まれる空気を造粒前にも真空加熱などにより脱気する方法も考えられる。

表5 粉碎粉末の物性

項目	測定値
比表面積 m <sup>2</sup> /g (BET法)	4.19
平均粒径 μm (SSS法)	0.58
充填密度 g/cm <sup>3</sup>	3.98
かさ密度 g/cm <sup>3</sup>	2.73
安息角 deg	41°

## 3) バインダー及びルブリカントについて

成形しようとする粉末粒子の表面が完全に清潔であれば、接触による粒子間の結合力は粒子自体の物理的強度と同等になると言われている。<sup>1)</sup>しかし、現実には粉末表面に付着した気体、水分等により、その結合力は極端に弱くなる。乾式法による造粒及び成形にはバインダーが必要となるわけであるが、中空ペレットのように圧力不均衡部が多い成形では、通常以上にバインダー添加率を増やさなくてはならない。又、ペレット抜出し時にコアロッドとの摩擦により発生する振動(通称びびりと称しているもの)を小さくするため、ルブリカントも必要となってくる。

試験にはバインダーとルブリカントを兼用した有機剤(商品名、K-3ワックス)を用い

た。物性を表6に示すが、中実ペレットと同等の強度・外観を有する中空ペレットに成形するには、K-3ワックスの添加率を増やす必要があった。しかし、ペレット中の添加剤を増やすことは、不純物の面から好ましいことではない。バインダー及びルブリカントの材質及び添加率については更に検討しなければならない。

1) 造粒便覧 東畑, 川上 et al, オーム社

表6 滑剤K-3-ワックスの特性値

項目	
成 分	12-ヒドロキシステアリン酸のトリグリセライド
酸 化	2.0 以下
ケン化価	175 ~ 185
ヨウ素価	2.5 以下
上昇融点(℃)	85 ~ 87
色 相(APHA)	200 以下
粒 度	100 メッシュアンダー

川研ファインケミカル社製

#### 4.2 成形用ダイスの設計

中空ペレット成形用のダイスの設計ポイントは、コアロッドの寸法形状とその材質である。乾式金型成形では、粉末の摩擦によりコアロッドにはかなり大きな軸力が加わる。粉末充填深さが大きくなるほど軸力は大きくなるため、コアロッドは座屈変形を生じる。

試験に用いた2φmmのコアロッド(図2-4, 参照)は、粉末充填深さを55mmにとり2.5~3.0ton/cm<sup>2</sup>の圧力で成形した時に、シャンク取付部にて破断した。図10に破断部の写真を示すが、破断面は斜め方向になっており、これは座屈変形時に作用する曲げ応力によるものと考えられる。

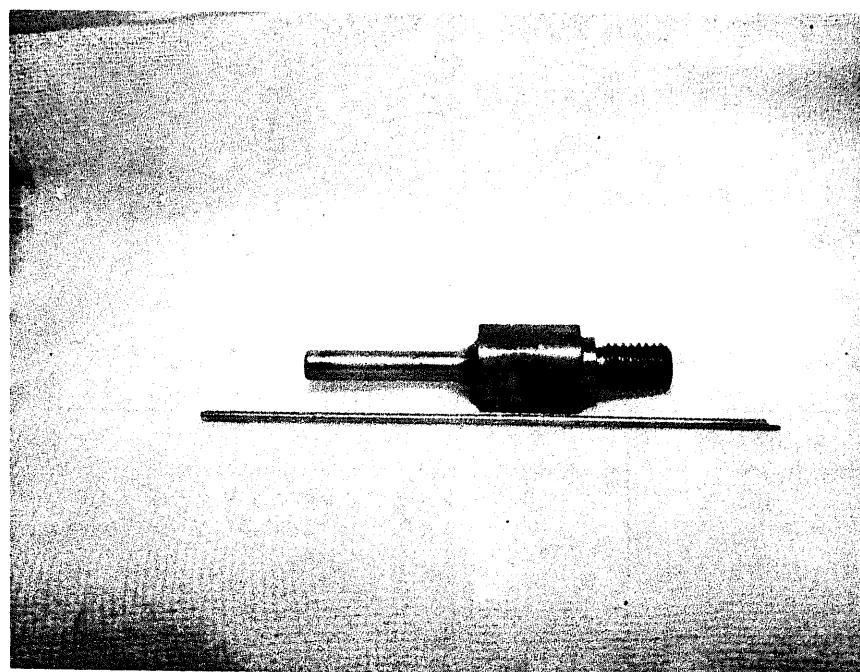


図9 コアロット破断部の外観

## 1) 寸法形状

先に述べたように、コアロッドの寸法形状を決める上で、座屈限界値を解析する必要がある。今回の試験中に破損したコアロッドの座屈を解析すると、図10のモデルにより、座屈限界値 ( $P_{Bc}$ ) は約  $90 \text{ kg/cm}^2$  である。（参考資料-1に算出式を示す。）これに対し加えられた座屈力  $P_B$  は圧粉体の側圧を加圧力の  $1/3$ 、ロッドとの摩擦係数  $\mu$  を 0.1 として計算すると、約  $110 \text{ kg/cm}^2$  となり、コアロッドの座屈限界値をオーバーしている。

$P_{Bc}$  値を向上させるには、粉末の最大充填深さを  $40 \text{ mm}$  以下に制限しコアロッドの長さ ( $\ell$ ) を  $100 \text{ mm}$  以下にすれば良いが、下パンチ内部にシャング部が挿入できるように下パンチ中空

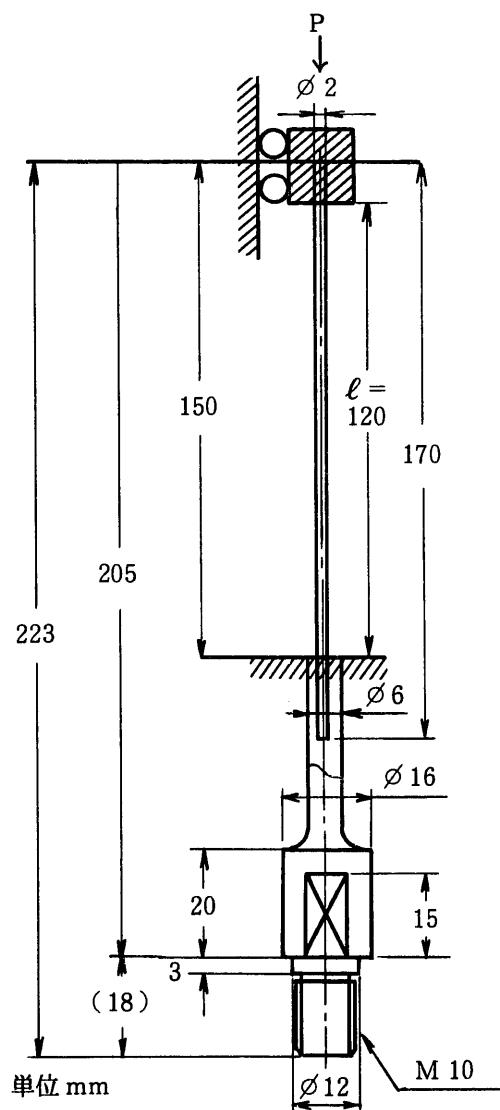


図10 破断したコアロッドの座屈モデル

部を修正する必要がある。ロッドの先端形状は現在、円すい台形であるが、成形機の自動充填機構との接触を考えると球状の仕上げの方が良いと思われる。改良案を図11に示す。

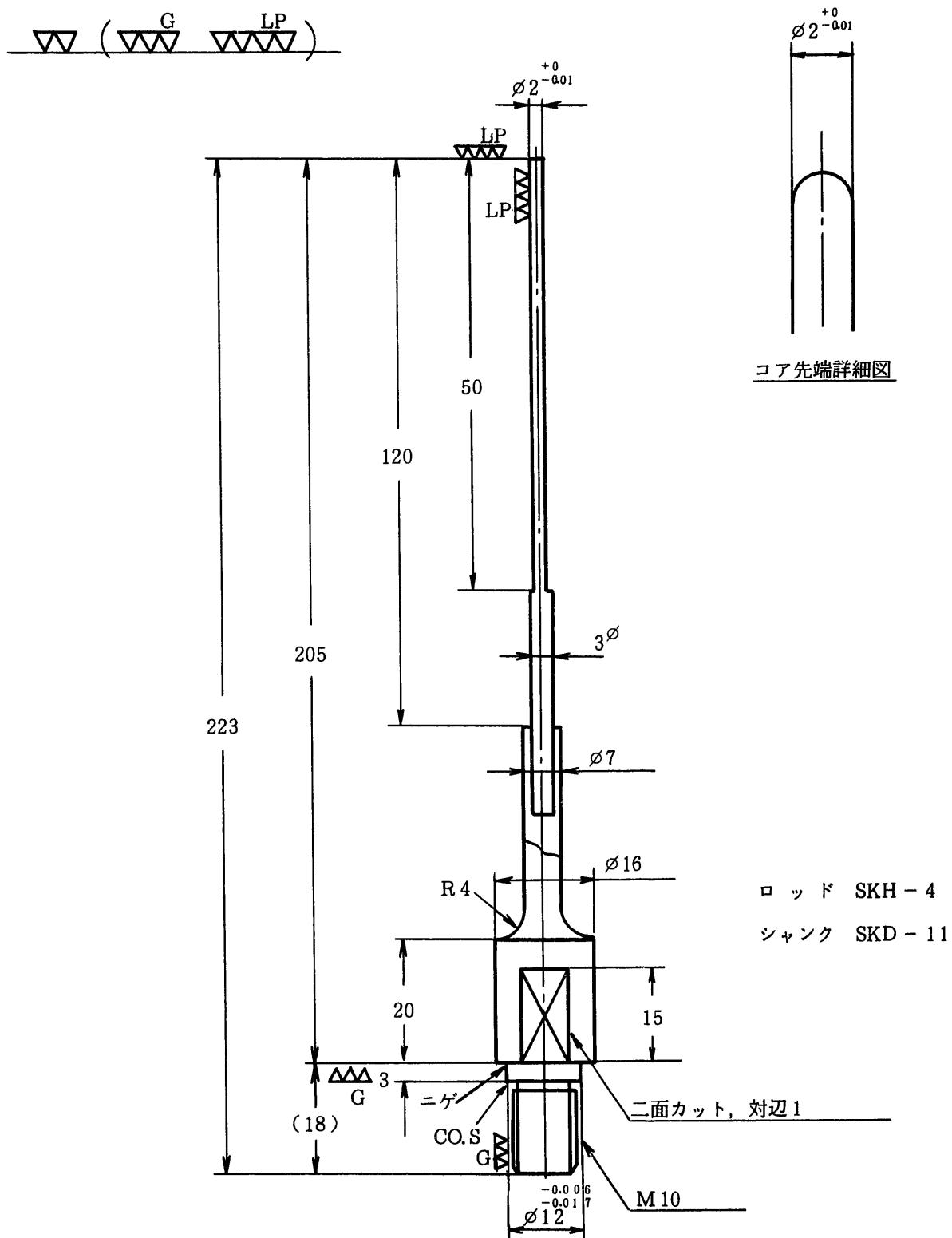


図11 改良型コアロッド

## 2) 材質

通常ダイスに用いられる材質は、超硬、ダイス鋼があるが、これらは主に剛性の高い素材であり、かならずしも細いコアロッドにむいていとは言えない。特に、粉末がダイに不均一に充填された場合、加圧時に大きな剪断応力がコアロッドに加わる。超硬のように弾性変形がほとんどない素材では、下パンチの面位置で折れることがあった。

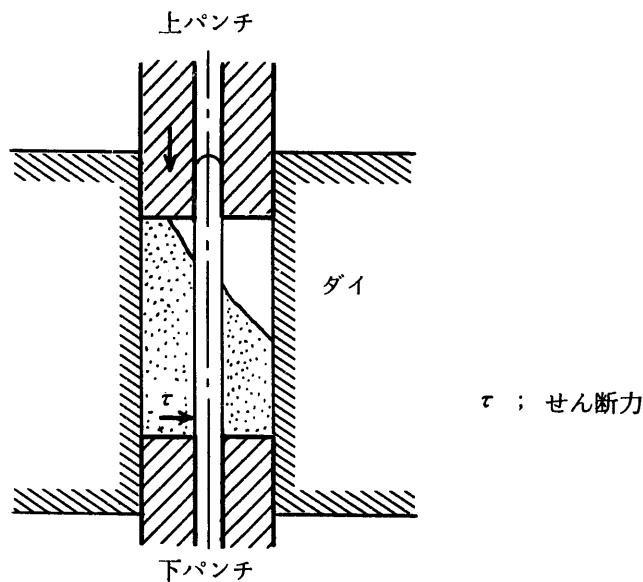


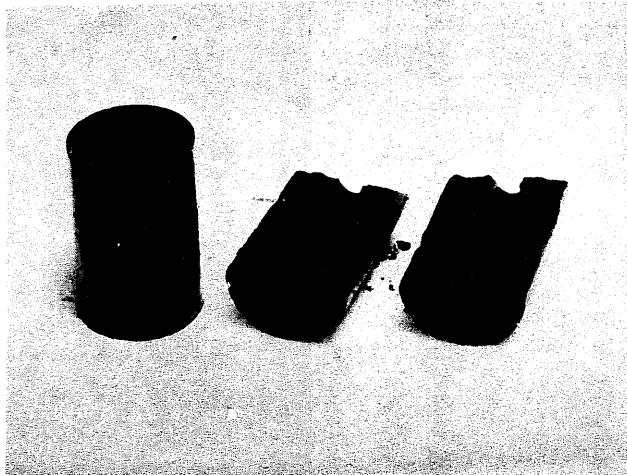
図12 不均一な充填となった場合、コアロッドに生ずるせん断力

FBR中空ペレットのように $2\phi$ mm程度の細径コアロッドは、弾性変形領域も考慮して高速度鋼（SKH-4程度）を素材とした方が良い結果が得られた。ただし、ヤング率は超硬よりも30%程度低下するため、座屈限界を充分に解析しておく必要がある。

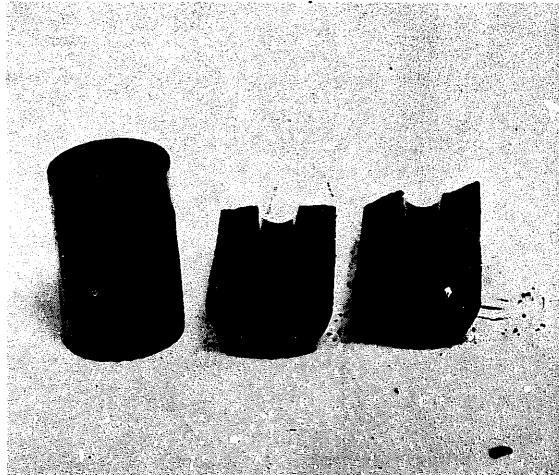
### 4.3 中空ペレット内径について

現有の乾式金型成形において成形できる最少中空径について調べた。量産性を無視して、手動により粉末充填を行った場合、 $1.5\phi$ mm,  $1.0\phi$ mmのコアロッドを用いて、焼結上りで $1.3\phi$ mm,  $0.85\phi$ mmの中空径を有するペレットの製作が可能であった。図13, 14にグリーンペレットと焼結ペレットの外観を各々示す。

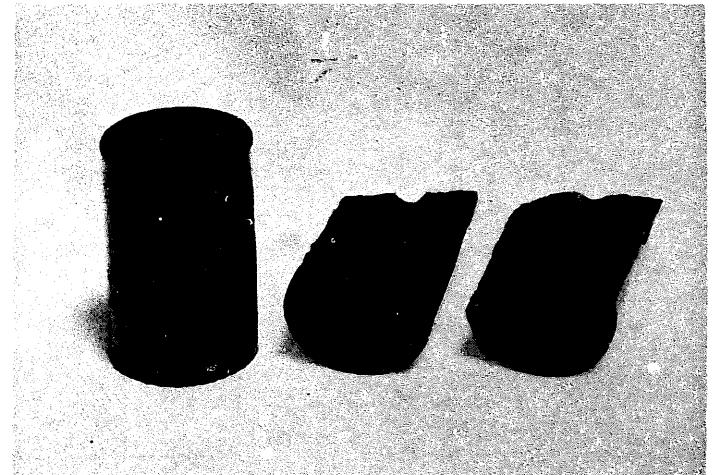
しかし、 $1.0\phi$ mmのコアロッドは強度不足であり、手動の均一な充填を行ったとしても折れやすい。現有の成形機では $1.0\phi$ mmの内径が限界と考えられる。



a)  $2.0\phi_{\text{mm}}$  中空



b)  $1.0\phi_{\text{mm}}$  中空



c)  $1.0\phi_{\text{mm}}$  中空

図 13  $2\phi_{\text{mm}}$  以下の中空径を有するペレット  
(グリーンペレット)

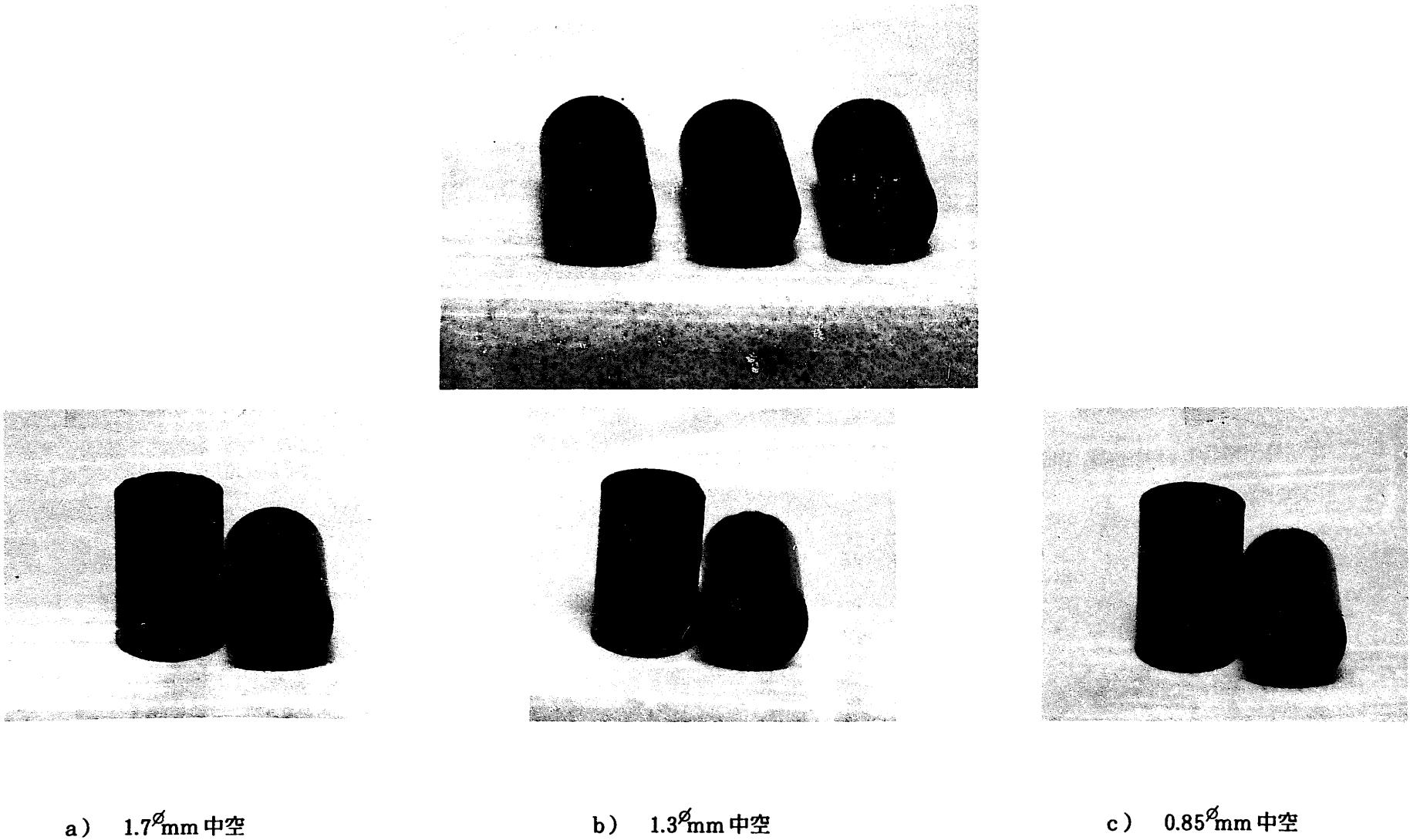


図 14  $2\phi\text{mm}$  以下の中空径を有するペレット  
(焼結ペレット)

## 5. 結論

現有の乾式金型成形による中空ペレットの量産製造について、内径の限界、 $L/D$ の限界等を試験してきた。検討結果を総括し以下に示す。

- ①  $2\varnothing\text{ mm}$  のコアロッドを用いて  $1.7\varnothing\text{ mm}$  の中空径を有する焼結ペレットは量産が可能である。  
しかし、手動充填による少量の試験製造ならば、約  $0.9\varnothing\text{ mm}$  までの中空径が製造可能である。  
又、ペレットの  $L/D$  比は最大で 3 である。
- ② 充填、加圧時の粉末流動性がポイントとなるため、造粒処理はよりきびしい管理が必要である。
- ③ ルブリカント及びバインダーは中実ペレット成形よりも多く添加する必要がある。又、現行の K-3 よりも離型効果・結合効果の高い有機材を調査する必要がある。
- ④ コアロッドの設計にあたっては、座屈限界値を考慮して形状を決めると共に、その材質は韌性の高い素材が良い。

## 6. 今後の展開

乾式金型成形にてFBR用の中空ペレットを量産する場合、以下の様に形状の制約をうける。又、

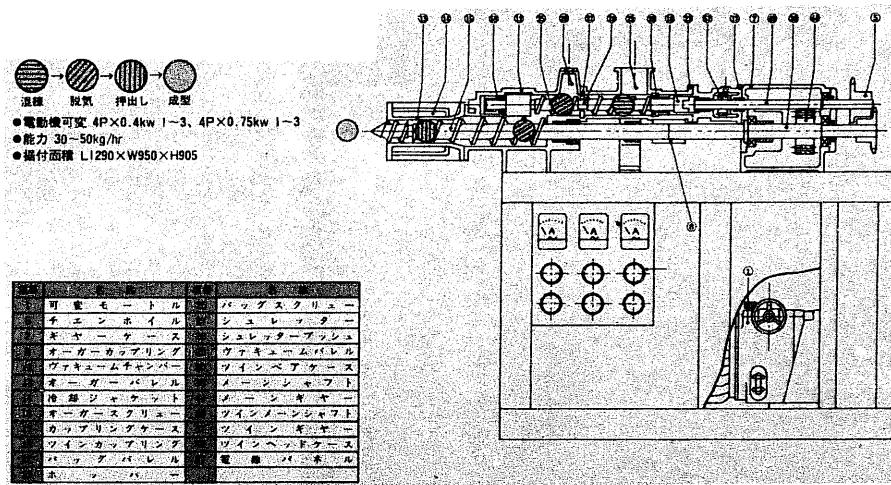
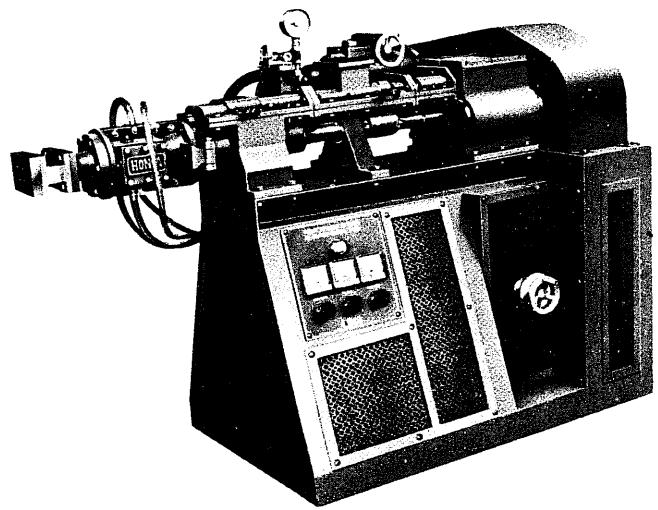
- ① ペレットのL/D比は3以下
- ② 中空部は同心上に1ヶ所
- ③ 中空径は約 $1.6\varnothing\text{mm}$ 以上

中空ペレットに限らず、乾式金型成形では原料粉の造粒処理に大きく左右されると共に、均質な密度のものは得にくい。

現有装置及び工程の改良の余地もかなりあるが、中空径による密度のコントロール<sup>\*1</sup>、又はL/D比を10以上とした製造・検査コストの低減化なども含めて今後の中空ペレット製造試験を開拓していくとすれば、乾式金型成形以外の成形も考える必要がある。一般のセラミック業界で広く用いられている押出し成形法などが、その一例である。半乾式のスラリー状に原料を調整して、任意の形状に押し出し成形するものである。その工程の詳細と構想は他にゆずるが、押出し成形装置と成形体を図15に照介しておく。

---

\*1 ; 「中空径による密度のコントロール」とは、マトリックスの密度は93~95%T.D.で一定とし、中空径を $0.5\sim 1.7\varnothing$ と変えることで、ペレット全体の密度をコントロールする方法である。



b) 押出し成形装置



a) 成形体

図15 押出し成形装置と成形体

## 7. 謝 辞

本試験の実施にあたり原料粉の物性測定をしていただいた品質管理課の皆様、ならびに原料粉の調達をしていただいた管理課の皆様に深く感謝の意を表します。

## **参考資料**

### **コアロッドの座屈解析**

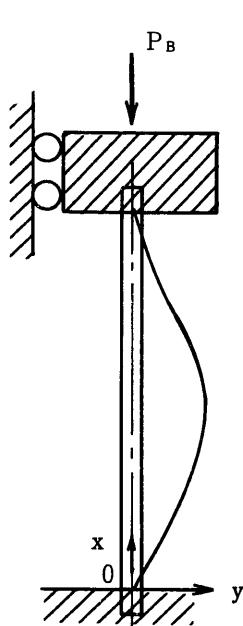
## コアロッドの座屈解析

大きな軸力が作用する棒の曲げに対する基礎式は、以下の形でまとめられる。

$$\left. \begin{aligned} M &= EI \frac{d^2 v}{dx^2} \\ F &= EI \frac{d^3 v}{dx^3} + P_B \frac{dv}{dx} \\ P &= EI \frac{d^4 v}{dx^4} + P_B \frac{d^2 v}{dx^2} \end{aligned} \right\} \dots \quad (1)$$

$P_B$  ; 座屈荷重  
 $V$  ; 変位量

座屈にはいる限界の状態（下図）の条件式は、(1)式の第3式において等分布荷重を0として得られる。



$$EI \frac{d^4 v}{dx^4} + P_B \frac{d^2 v}{dx^2} = 0 \quad \dots \quad (2)$$

この4階の線形齊次微分方程式の一般解は、

$$\alpha^2 = \frac{P_B}{EI}$$

として、次の形で得られる。

$$V = C_1 \sin \alpha x + C_2 \cos \alpha x + C_3 x + C_4 \quad \dots \quad (3)$$

(3)式に図に示す座屈形の端末条件を与えると、

条件	$x = 0$ で $V = 0$ $V' = 0$ $x = \ell$ で $V = 0$ $V' = 0$
----	---

$$\left\{ \begin{array}{l} C_2 + C_4 = 0 \\ \alpha C_1 + C_3 = 0 \\ \sin \alpha \ell \cdot C_1 + \cos \alpha \ell \cdot C_2 + \ell C_3 + C_4 = 0 \\ \alpha \cos \alpha \ell \cdot C_1 - \alpha \sin \alpha \ell \cdot C_2 + C_3 = 0 \end{array} \right\} \dots \quad (4)$$

図 座屈形モデル

したがって、座屈条件式は以下の形となる。

$$\left| \begin{array}{cccc} 0 & 1 & 0 & 1 \\ \alpha & 0 & 1 & 0 \\ \sin \alpha \ell & \cos \alpha \ell & \ell & 1 \\ \alpha \cos \alpha \ell & -\alpha \sin \alpha \ell & 1 & 0 \end{array} \right| = 0 \quad \dots \quad (5)$$

- 29 -

(5)式を展開し、変形すると(6)式が得られる。

$$4 \alpha \cdot \sin \frac{\alpha\ell}{2} \cdot \left( \sin \frac{\alpha\ell}{2} - \frac{\alpha\ell}{2} \cdot \cos \frac{\alpha\ell}{2} \right) = 0 \quad \dots \dots \dots \quad (6)$$

(6)式の最小限は、 $\sin(\alpha\ell/2) = 0$ であることから、 $\alpha\ell/2 = \pi$  ..... (7)

したがって、座屈の限界値 ( $P_{bc}$ ) は、

$$P_{BC} = \frac{4\pi^2 EI}{\ell^2} \quad \dots \dots \dots \quad (8)$$

となる。又、(4)式に(7)式を代入すると、 $C_1 = C_3 = 0$ 、 $C_2 = -C_4$  の関係が得られる。したがって、座屈の形は、

$$V = C_2 (\cos \alpha x - 1) \\ = C_2 \left\{ \cos \left( 2\pi \frac{x}{\ell} \right) - 1 \right\}$$

となり、これは図の黒線で示した形である。