

JAERI - M

87-024

ヨウ化メチレンを用いた高温ガス炉用
被覆燃料粒子の破損および欠陥の検出

1987年2月

湊 和生・菊地 啓修・福田 幸朔

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の間合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）
あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城
県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department
of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun,
Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1987

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 山田軽印刷所

ヨウ化メチレンを用いた高温ガス炉用
被覆燃料粒子の破損および欠陥の検出

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部
湊 和生・菊地啓修・福田幸朔

(1987年1月29日受理)

ヨウ化メチレンの浸入をX線ラジオグラフで観察することにより、貫通破損粒子および高密度熱分解炭素層(PyC層)の欠陥を検出することを試みた。その結果、この方法は、検査法として有効であることが確認された。また、この方法は、その適用範囲は限定されているが、酸浸出法および塩素化法よりも簡単であることが明らかになった。つぎに、製造条件の異なる26種類のPyC層の検査に、この方法を適用した。ヨウ化メチレンが浸入したPyC層も観察された。ここでは、PyC層の欠陥の存在割合とその蒸着条件との関係について調べた。また、走査型電子顕微鏡によるPyC層の破面および外表面の観察を実施した。

Detection of failed and defective coating layers in HTGR
fuel particles by methylene iodide intrusion

Kazuo MINATO, Hironobu KIKUCHI and Kousaku FUKUDA

Department of Fuels and Materials Research
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received January 29, 1987)

The technique of impregnation with liquid methylene iodide followed by X-ray radiography was tested to detect failed particles and defective pyrolytic carbon layers. The test revealed that this technique was useful and easier than the acid-leach method and the chlorine-leach method though this technique was not of wide application. This technique was then applied to examine 26 kinds of pyrolytic carbon layers with different deposition parameters. Some pyrolytic carbon layers were intruded by methylene iodide. The relation between the fraction of defective pyrolytic carbon layers and their deposition conditions was studied, and the fracture and outer surfaces of the layers were observed by scanning electron microscopy.

Keywords: HTGR, Coated Fuel Particles, Pyrolytic Carbon,
Methylene Iodide, X-ray Radiography, Failed Particles,
Defective Layers, Deposition Conditions

目 次

1. はじめに	1
2. ヨウ化メチレン法の試用	2
2.1 実験	2
2.2 結果および考察	2
2.2.1 貫通破損粒子の検出	2
2.2.2 高密度 PyC 層の欠陥の検出	3
3. ヨウ化メチレン法の適用	9
3.1 実験	9
3.2 結果および考察	9
4. 結論	17
謝 辞	17
参考文献	18

Contents

1. Introduction	1
2. Test of the technique	2
2.1 Experimental	2
2.2 Results and discussion	2
2.2.1 Detection of failed particles	2
2.2.2 Detection of defective PyC layers	3
3. Application of the technique	9
3.1 Experimental	9
3.2 Results and discussion	9
4. Conclusions	17
Acknowledgements	17
References	18

1. はじめに

高温ガス炉用のTRISO被覆燃料粒子は、微小球状の燃料核を、低密度熱分解炭素層（バッファ-PyC層）、内側高密度熱分解炭素層（IPyC層）、炭化ケイ素層（SiC層）、および外側高密度熱分解炭素層（OPyC層）で四重に被覆したものである。一番内側のバッファ-PyC層は、ガス状の核分裂生成物（FP）を溜める空間を与えるとともに、IPyC層を反跳核分裂片や燃料核のスウェリングから守る役割も持っている。IPyC層は、ガス状FPの拡散障壁である。SiC層は、ガス状FPおよび金属FPの拡散障壁である。一番外側のOPyC層は、ガス状FPの拡散障壁であるとともに、内側のSiC層を機械的に保護する役割も持っている。このように、これらの被覆層は、全体として、FPを粒内に保持する機能を有している。

しかし、これらの被覆層の一部分でも破損していたら、FPを保持する機能を十分に果たすことができず、FPは放出されやすい。また、ガス状FPの拡散障壁であるはずのPyC層が高いガス透過性を有していたら、ガス状FPの保持機能が低下するとともに、粒内の一酸化炭素（CO）ガスがSiC層と接触し、SiC層を腐食する⁽¹⁾。さらに、製造過程においては、IPyC層のガス透過性が高いと、SiC層が破損した粒子ができやすい⁽²⁻⁴⁾。

破損粒子の検出および破損率の測定には、硝酸浸出法⁽⁵⁾、塩素化法^(6,7)、軽照射法^(8,9)などが用いられている。また、水銀圧入法によるSiC層破損率の測定も報告されている⁽¹⁰⁾。PyC層のガス透過性の測定には、塩素法^(11,12)、He-Neガス透過法⁽¹³⁾、軽照射法⁽⁹⁾などが用いられている。これらの測定法では、硝酸、塩素、水銀、照射済試料などを取り扱わなければならない上に、高温や高圧が必要なものもある。

ヨウ化メチレン（ CH_2I_2 ）を用いた破損粒子の検出法⁽³⁾（ヨウ化メチレン法と呼ぶ）は、室温で密度 3.32 Mg/m^3 の液体であるヨウ化メチレンが被覆層の破損部分から粒内に浸入することを利用し、その状態をX線ラジオグラフィで観察するものである。この方法は、上記の方法に比べて簡単であるが、その適用の可否については実験的検討が必要である。

この試験では、ヨウ化メチレン法を用いた破損粒子の検出およびガス透過性に結びつくPyC層の欠陥の検出を試み、この方法を検査法として用いる際の利点および問題点を明らかにすることを目的とした。また、製造条件の異なる種々のPyC層について、この方法を適用し、PyC層の欠陥について検討した。

2. ヨウ化メチレン法の試用

2.1 実験

ヨウ化メチレンを用いた被覆燃料粒子の破損および欠陥の検出実験の手順を、以下に示す。まず、ヨウ化メチレンの液体の中に被覆燃料粒子を入れた。TRISOおよびBISO被覆粒子の密度は、それぞれ、約4および約6 Mg/m³であるので、これらの粒子はヨウ化メチレン中に沈む。つぎに、ヨウ化メチレンと被覆粒子の入っている容器を真空容器に入れ、ロータリーポンプで10分間真空引きした後、被覆粒子をヨウ化メチレンから取り出した。取り出された被覆粒子の表面は、ヨウ化メチレンで濡れているので、被覆粒子を紙の上で回転させながら、表面のヨウ化メチレンを取り除いた。その後、X線ラジオグラフィで観察し、被覆粒子の健全性を評価した。

ヨウ化メチレンの密度(3.32 Mg/m³)は、バッファーPyC層の密度(約1.1 Mg/m³)および高密度PyC層の密度(約1.85 Mg/m³)よりも大きいので、ヨウ化メチレンが被覆粒子内に浸入していると、X線ラジオグラフで容易に識別できる。

2.2 結果および考察

2.2.1 貫通破損粒子の検出

TRISOおよびBISO被覆の貫通破損粒子のX線ラジオグラフを、それぞれ、Fig. 1 および2に示す。これらの図には、比較のために、健全粒子のX線ラジオグラフも示した。これらの破損粒子は、意図的に破損させたものではなく、製品の中に含まれていたものである。破損粒子のバッファー層が白く見えるのは、ヨウ化メチレンが被覆層のき裂を通過して粒内に浸入し、かさ密度の低いバッファー層に溜っているためである。Fig. 1のTRISO粒子では左上に、Fig. 2のBISO粒子では右上に、それぞれ被覆層のき裂が見える。

ヨウ化メチレン法では、ヨウ化メチレンが粒内に溜っているときに、X線ラジオグラフを撮影する必要がある。燃料核と反応する硝酸や塩素ガスを用いる従来法とは、この点において大きく異なる。もし、粒内に一度浸入したヨウ化メチレンが、短時間しか粒内に留まらないのであれば、この方法は、検査法としてはあまり適当ではないと考えられる。しかし、ここでは、Fig. 1および2のX線ラジオグラフを撮影後、これらの破損粒子を大気中に3日間放置し、再びX線ラジオグラフを撮影したが、ヨウ化メチレンは粒内に留まっていた。この結果は、ヨウ化メチレン法が検査法として有効であることを示している。

このように、ヨウ化メチレン法を用いて、貫通破損粒子を検出できることが確認されたが、この方法を検査法として用いるには、利点がある反面、いくつかの制約および実用化に向けての課題がある。

ヨウ化メチレン法は、粒子の状態での貫通破損粒子の検出には適しているが、燃料コンパクトの状態では、この方法は適用できない。また、従来法では、汚染ウランの検出も可能であるが、ヨウ化メチレン法では不可能である。さらに、TRISO被覆後のSiC層破損粒子の検出も、事実

上不可能である。なぜなら、OPyC層を燃焼除去後のSiC層破損粒子は、燃料核およびIPyC層の酸化のために、通常は粒子の形を保っていないからである。このようなことから、ヨウ化メチレン法は従来法に代わる方法ではないことが、明らかである。

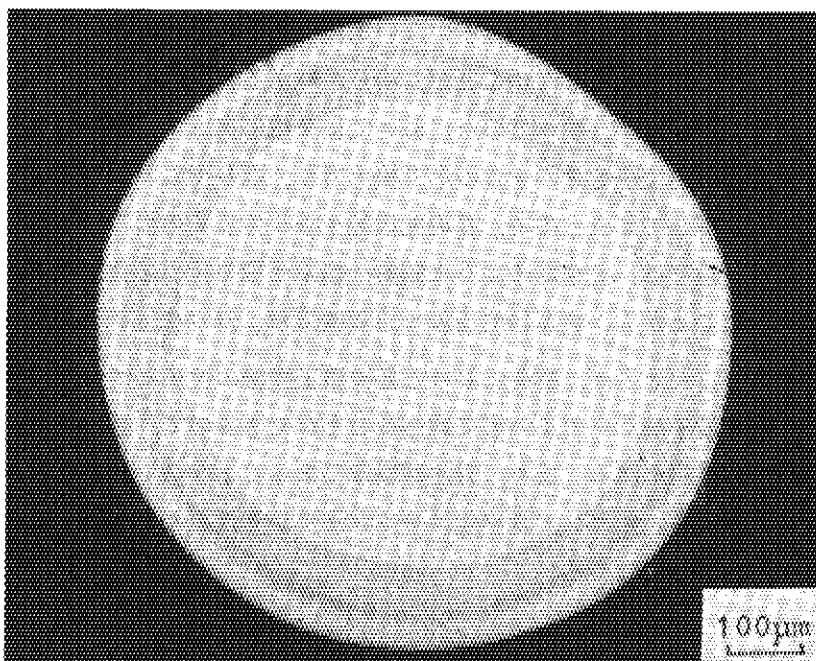
しかし、ヨウ化メチレン法が、すべての点において従来法に劣っているわけではない。ヨウ化メチレン法では、貫通破損粒子をそのままの形で検出でき、取り出して調べることができる。従来法では、燃料核を溶解してしまうので、貫通破損粒子をそのままの形で見るができない。また、ヨウ化メチレン法では、従来法のように硝酸や塩素を取り扱う必要がなく、方法自体が簡単である。このようなことから、ある目的を絞った実験では、ヨウ化メチレン法が従来法よりも適している場合がある。たとえば、製造における各被覆工程後の粒子について、ヨウ化メチレン法を適用すると、破損粒子をそのままの形で調べることができるので、被覆層破損の原因を調べるのに、大いに役立つと思われる。また、方法が簡単であることから、製造における品質管理にも適していると考えられる。ただし、ヨウ化メチレン法を検査法として用いる前に、従来法との相関を調べておくことが必要である。

2.2.2 高密度PyC層の欠陥の検出

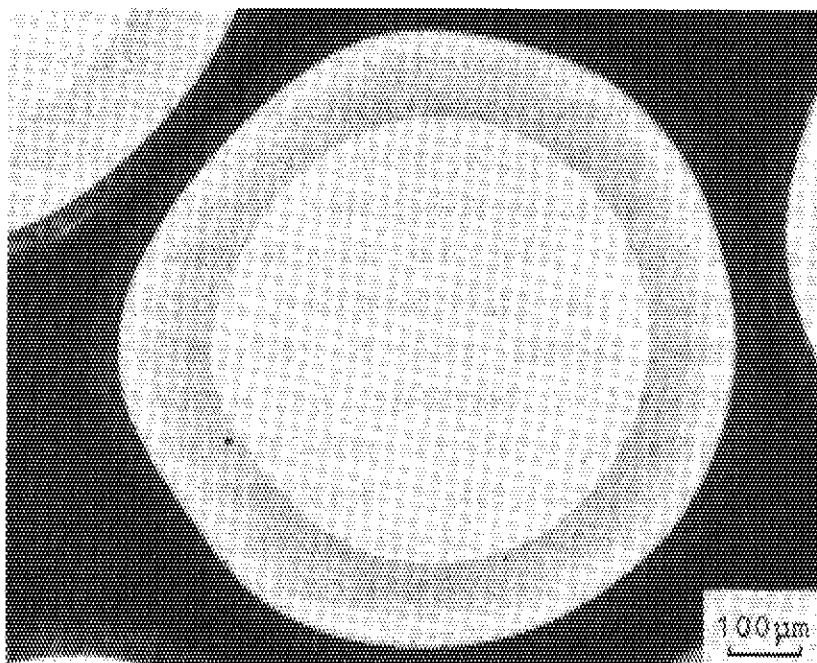
ヨウ化メチレンを用いて貫通破損粒子の検出を試みている際に、この方法により、高密度PyC層の欠陥を検出できることを見出した。OPyC層に欠陥を有する被覆粒子のX線ラジオグラフをFig. 3に示す。OPyC層のところに周方向に白く見えるのは、ヨウ化メチレンがOPyC層の欠陥に浸入しているためであり、粒子表面がヨウ化メチレンで濡れているためではない。このことは、Fig. 4に示す粒子表面が濡れている状態で撮影したX線ラジオグラフと比較することで、容易に理解されるであろう。粒子個々により、ヨウ化メチレンの浸入の状態は異なり、OPyC層の全周にわたり浸入している粒子および一部分にだけ浸入している粒子が観察された。

前節2.2.1で述べたのと同様に、ヨウ化メチレンがPyC層の欠陥に留まっている時間を調べることは、この方法を検査法として用いるためには必要である。ここでは、同一試料について、X線ラジオグラフを5回撮影し、経過時間とヨウ化メチレンがPyC層に浸入している粒子割合との関係を調べた。Fig. 5に示すように、時間の経過とともに、ヨウ化メチレンはPyC層から徐々に抜け出てしまい、17時間後には、ヨウ化メチレンがPyC層の欠陥に留まっている粒子数は、1回目の測定の半分以下であった。このことは、この検査を定量的に行なうことの難しさを表わしている。しかし、被覆粒子をヨウ化メチレンから取り出してからX線ラジオグラフを撮影するまでの時間、および粒子表面のヨウ化メチレンを取り除く条件を、できる限り一定にすれば、PyC層の品質に対して定性的な判断を示すことができる。

高密度PyC層は、ガス状FPの拡散障壁として機能しなければならない。ヨウ化メチレンがPyC層に浸入しないことは、ガス状FPの拡散障壁として有効であることの証明にはならないが、少なくとも、液体であるヨウ化メチレンが浸入する欠陥を有するPyC層は、望ましくない。この簡単なヨウ化メチレン法によって、PyC層の欠陥を検出できるという結果は、たいへん重要である。この方法は簡単であるので、PyC層の品質管理に適用できるであろう。

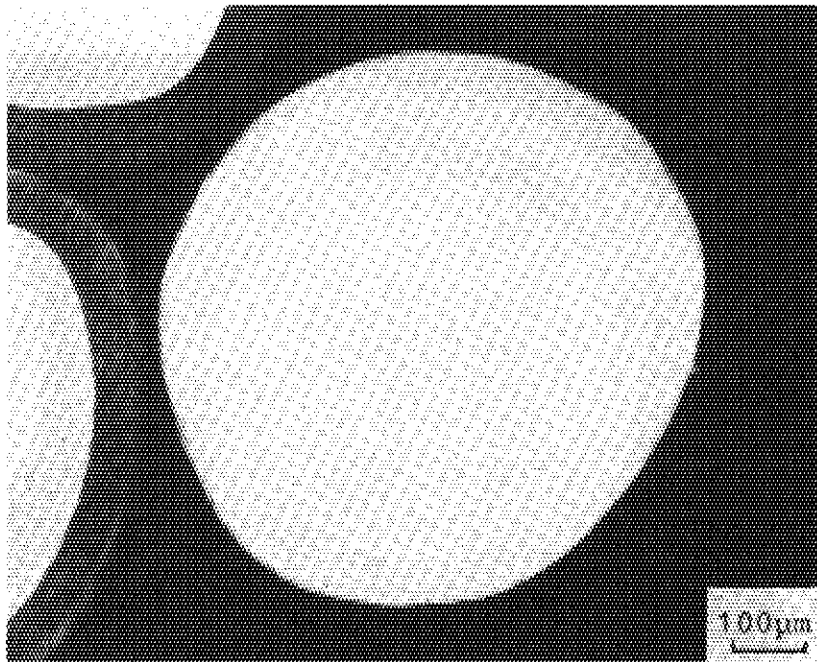


(a)

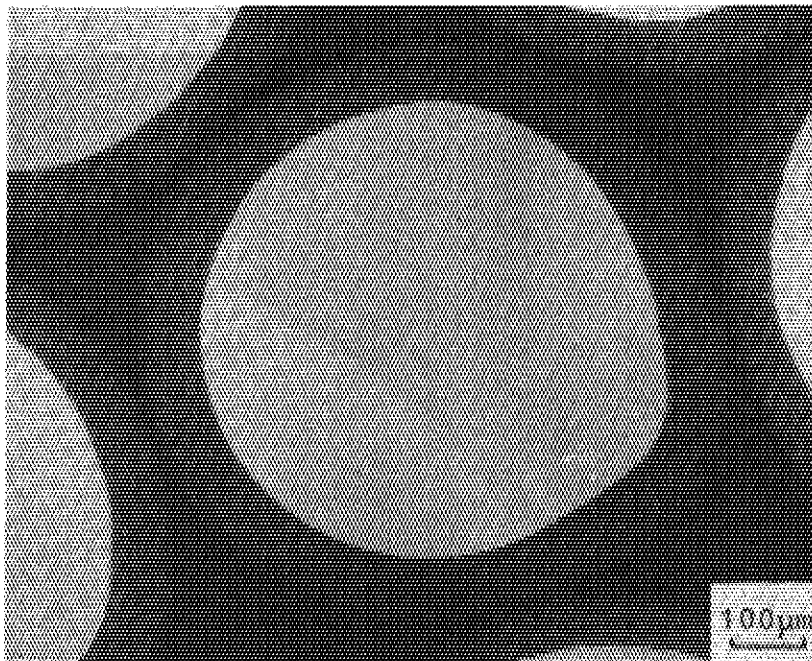


(b)

Fig. 1 X-ray micro-radiographs of TRISO coated particles.
(a) Methylene iodide intrusion into buffer layer of failed particle; (b) Intact particle.

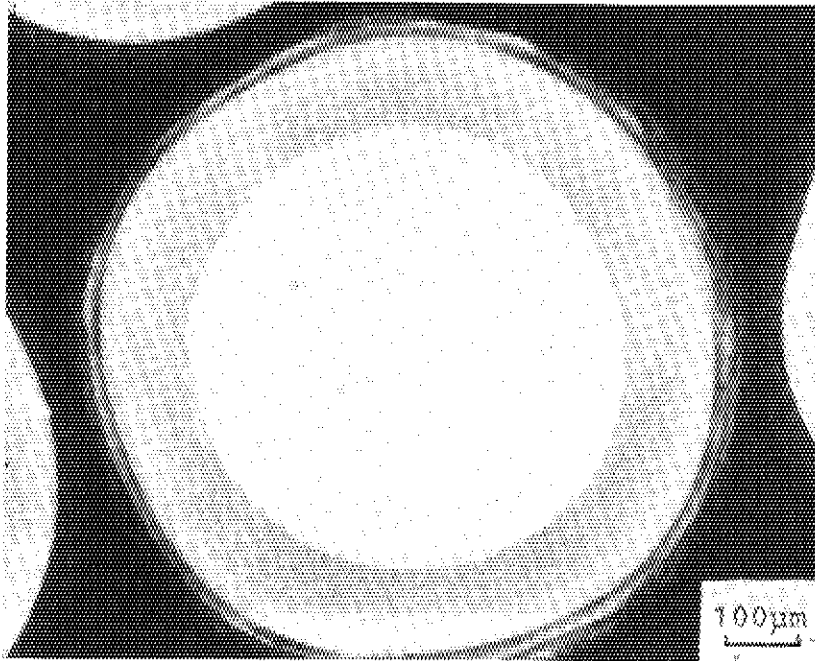


(a)

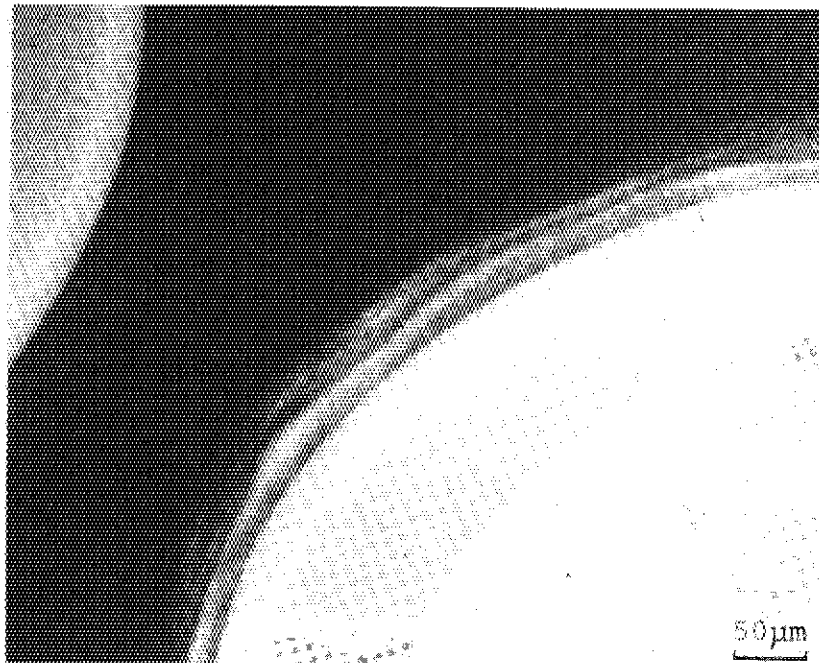


(b)

Fig. 2 X-ray micro-radiographs of BISO coated particles.
(a) Methylene iodide intrusion into buffer layer
of failed particle; (b) Intact particle.

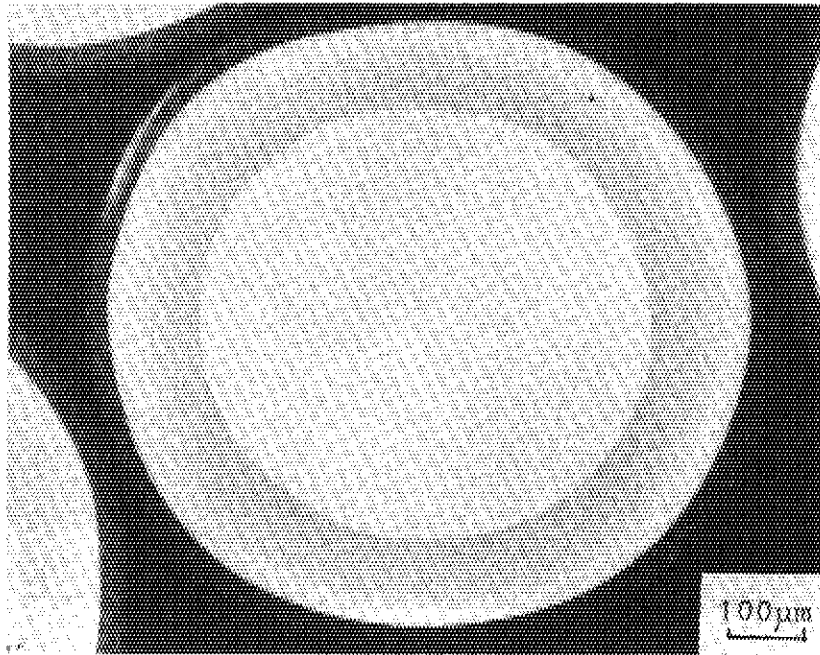


(a)

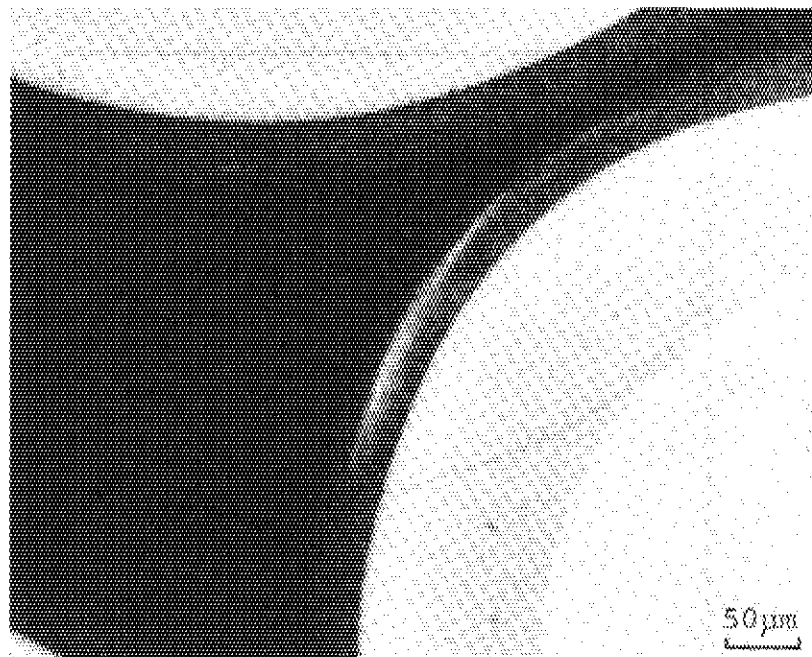


(b)

Fig. 3 X-ray micro-radiographs of particles with methylene iodide intrusion into OPyC layers.



(c)



(d)

Fig. 3 (continued)

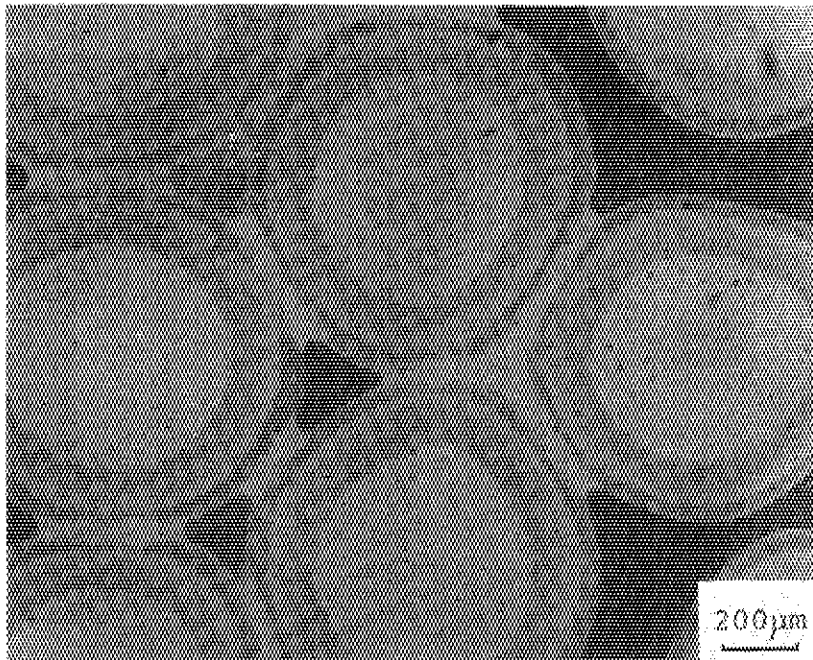


Fig. 4 X-ray micro-radiograph of particles wet with methylene iodide.

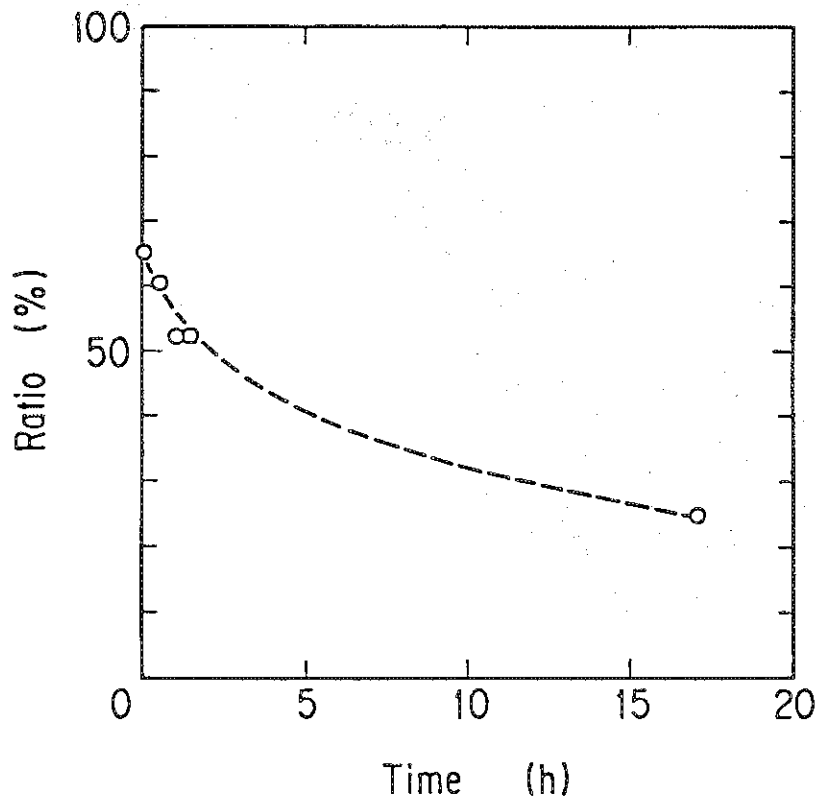


Fig. 5 Decrease in ratio of OPyC layers intruded by methylene iodide with time.

3. ヨウ化メチレン法の適用

3.1 実験

ヨウ化メチレン法を用いて、種々のPyC層の欠陥の有無を調べた。用いた試料は、製造バッチの異なる15種類のTRISO被覆粒子および11種類のBISO被覆粒子である。これらの粒子の最外PyC層の密度および蒸着条件をTable 1に示す。Table 1からわかるように、これらのPyC層は、大きさの異なる5種類の流動床で蒸着されたものである。PyC層の密度は、テトラブロムエタンおよびベンゼンを用いて、浮遊沈降法により測定した値である。実験に用いたPyC層の最低および最高密度は、それぞれ、1.27および2.06 Mg/m³であるが、大部分のPyC層の密度は、1.80～1.90 Mg/m³の範囲である。蒸着速度は、被覆層厚さを蒸着時間で除した値である。ここでの蒸着速度は、2.4～13.8 μm/minの広い範囲にわたっている。蒸着温度は、流動床の内壁または外壁の温度を測定した値である。流動床の大きさが異なると、温度測定位置、温度分布等が異なるので、蒸着温度の比較は、同じ流動床のものについてだけ意味がある。

また、ヨウ化メチレンが浸入する欠陥の性状を調べるために、走査型電子顕微鏡 (SEM)により、PyC層の破面および外表面を観察した。

3.2 結果および考察

種々のPyC層について、ヨウ化メチレン法により欠陥の有無を検査した結果を、Table 2に示す。検査した26種類のPyC層のうち、9種類のPyC層にヨウ化メチレンの浸入が認められた。これらの試料では、OPyC層にヨウ化メチレンが浸入していた被覆粒子の割合は、最高で約80%、最低でも約20%であった。

この検査結果とPyC層の密度および製造条件との関係をFig. 6に示す。直径24mmの流動床で蒸着したPyC層は、被覆速度および密度ともに広い範囲にわたっているが、ヨウ化メチレンの浸入は、どのPyC層にも認められなかった。直径60mmの流動床で蒸着した7種類のPyC層には、ヨウ化メチレンの浸入が認められた。これら7種類のPyC層では、密度はどれも1.9 Mg/m³前後であるが、蒸着速度が8.4～13.8 μm/minと速いことが特徴である。直径100～200mmの流動床で蒸着したPyC層では、密度はどれも1.85 Mg/m³前後であるが、蒸着速度の速い2種類のPyC層にはヨウ化メチレンの浸入が認められたが、蒸着速度の遅い2種類のPyC層にはヨウ化メチレンの浸入は認められなかった。

ヨウ化メチレンが高密度PyC層に浸入した試料は、試料G-279を除いて、すべてTRISO被覆粒子である。したがって、ここで検出された欠陥がPyC層を貫くものであるか否かについての情報は、限られた試料からしか得られなかった。BISO被覆である試料G-279では、ヨウ化メチレンは、高密度PyC層には浸入していたが、バッファー層には浸入していなかった。また、試料G-050では、SiC層破損粒子 (IPyCおよびSiC層が破損しているが、OPyC層は破損していない粒子) が7粒あったが、Fig. 7に示すように、ヨウ化メチレンは、OPyC層には浸入し

ていたが、バッファ層には浸入していなかった。なお、Fig. 7(a)の粒子の燃料核の周囲に白く見えるものは、炭化ウランである⁽²⁾。Fig. 7(b)の粒子の燃料核は、被覆層の破損位置近くでは様子が異常であるが、この場合も燃料核が炭化しているためである⁽²⁾。試料G-279 およびG-050における観察結果は、ヨウ化メチレンが浸入した欠陥は、PyC層を貫くものではないことを示している。

PyC層のSEM観察においては、ヨウ化メチレンが浸入した試料の破面および外表面に、欠陥が認められた。その代表例として、試料G-090のSEM観察写真をFig. 8に示す。Fig. 8(a)では、PyC層の破面の周方向に、組織が不均一である部分が見える。その部分を拡大したものがFig. 8(b)である。この部分では、球状に見えるSGF (spherical growth feature)⁽¹⁴⁾の間に周方向につづく大きな空間があることがわかる。また、Fig. 8(c)では、PyC層外表面に、内部へ続いているような穴が見られる。ヨウ化メチレンは、このような穴から内部へ浸入し、周方向につづく空間に溜るため、X線ラジオグラフでは、このような欠陥を検出しているものと考えられる。

ヨウ化メチレンの浸入が認められなかったPyC層の破面の写真をFig. 9に示す。試料PyC 0516とG-113は、密度はそれぞれ2.06および1.89 Mg/m³と異なるが、蒸着速度はともに遅い。試料PyC 0118とG-113は、密度はほぼ同じであるが、蒸着速度がそれぞれ12.5および2.7 $\mu\text{m}/\text{min}$ と大きく異なる。これらの試料では、密度および蒸着速度の相異により、SGFの大きさや、SGF間の融合の度合いが少し異なるが、Fig. 8で見られたような欠陥は認められなかった。

ここでの実験結果だけからでは断定できないが、Fig. 6の結果およびSEMの観察結果から見る限り、ヨウ化メチレンが浸入するPyC層の欠陥の生成原因は、蒸着が不均一であるためと考えられる。蒸着が不均一になる因子としては、蒸着速度が速いこと、および粒子の流動状態が一様でないことが挙げられる。蒸着速度が速いとガス透過性のあるPyC層ができやすい、という報告⁽¹⁵⁾もある。

ここでの実験において、ヨウ化メチレンの浸入が認められたPyC層は、試料G-182を除いて、現在の仕様を満たしているものである。このようなPyC層の欠陥をなくすためには、蒸着条件の改善が必要である。

Table 1 Density and coating conditions of PyC layers.

sample name	coating type	density (Mg/m ³)	coating rate (μ m/min)	coating temp. ($^{\circ}$ C)	diameter of coater (mm)	size of batch (g)
PyC0516	TRISO	2.06	4.9	1300	24	8
PyC0519	TRISO	2.02	7.5	1350	24	8
PyC0806	TRISO	1.27	10.9	1550	24	8
PyC0807	TRISO	1.47	7.8	1450	24	8
PyC0808	TRISO	1.71	5.6	1400	24	8
PyC0110	BISO	1.87	4.9	1370	24	8
PyC0111	BISO	1.77	3.0	1370	24	8
PyC0112	BISO	1.97	7.4	1370	24	8
PyC0113	BISO	1.81	4.7	1380	24	8
PyC0114	BISO	1.93	4.1	1360	24	8
PyC0115	BISO	1.89	9.2	1390	24	8
PyC0116	BISO	1.87	2.9	1355	24	8
PyC0117	BISO	1.79	11.8	1410	24	8
PyC0118	BISO	1.84	12.5	1410	24	8
PyC0119	BISO	1.88	2.4	1345	24	8
G-030	TRISO	1.84	9.6	1430	60	500
G-050	TRISO	1.82	13.8	1430	60	500
G-060	TRISO	1.89	10.2	1460	60	500
G-070	TRISO	1.90	9.0	1460	60	500
G-080	TRISO	1.90	9.6	1460	60	500
G-182	TRISO	1.96	8.4	1420	60	500
G-279	BISO	1.88	10.2	1390	60	500
G-103	TRISO	1.85	4.4	1355	100	600
G-113	TRISO	1.89	2.7	1420	160	2000
G-090	TRISO	1.85	6.8	1420	200	1900
G-102	TRISO	1.84	4.6	1400	200	830

Table 2 Evaluation of defective PyC layers by methylene iodide intrusion method.

sample name	number of particles examined	defective PyC layers (%)
PyC0516	144	0
PyC0519	154	0
PyC0806	106	0
PyC0807	149	0
PyC0808	159	0
PyC0110	144	0
PyC0111	122	0
PyC0112	147	0
PyC0113	155	0
PyC0114	152	0
PyC0115	188	0
PyC0116	110	0
PyC0117	150	0
PyC0118	181	0
PyC0119	179	0
G-030	132	79
G-050	224	67
G-060	91	66
G-070	138	76
G-080	117	71
G-182	142	18
G-279	154	19
G-103	237	0
G-113	126	0
G-090	191	34
G-102	163	39

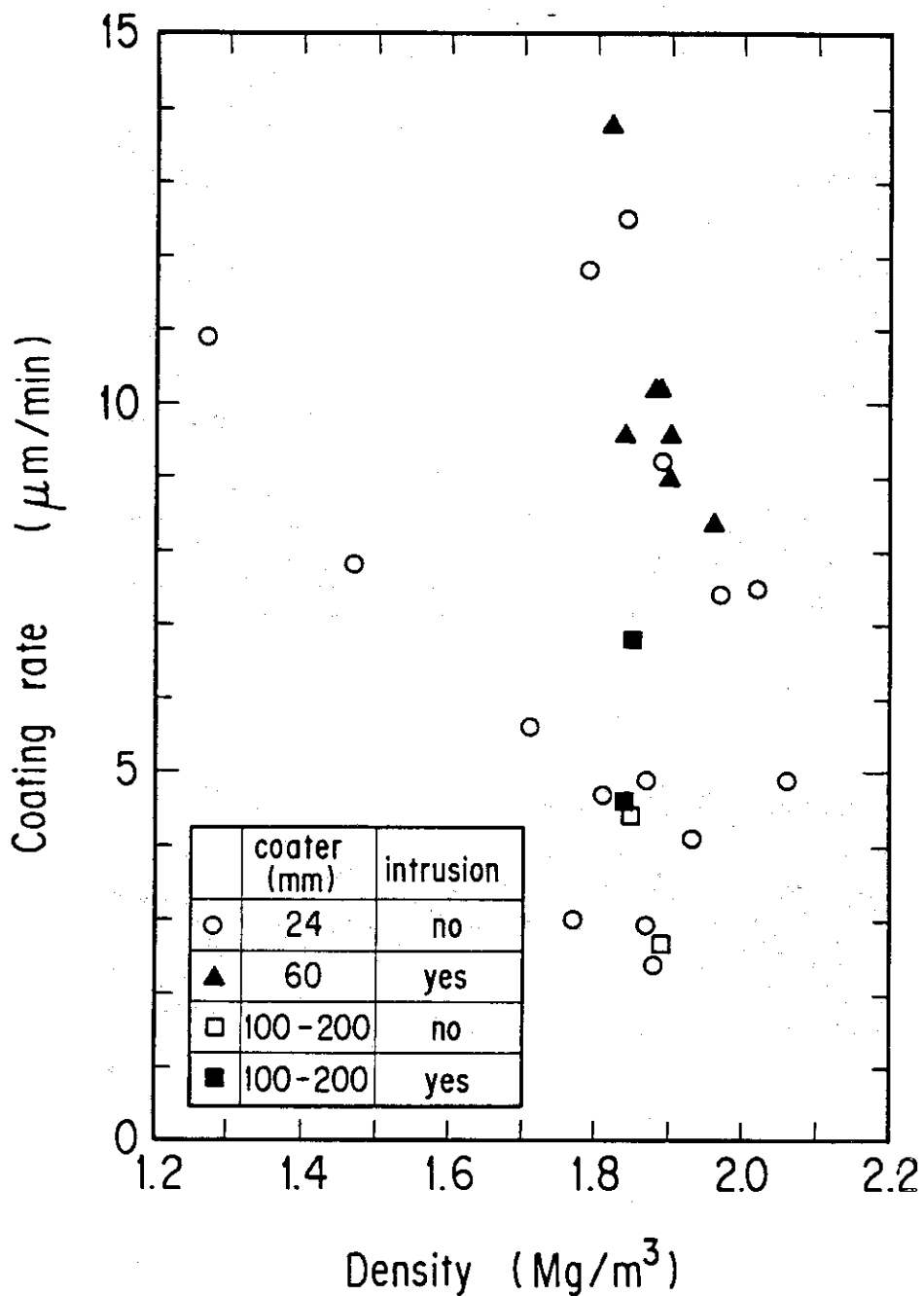
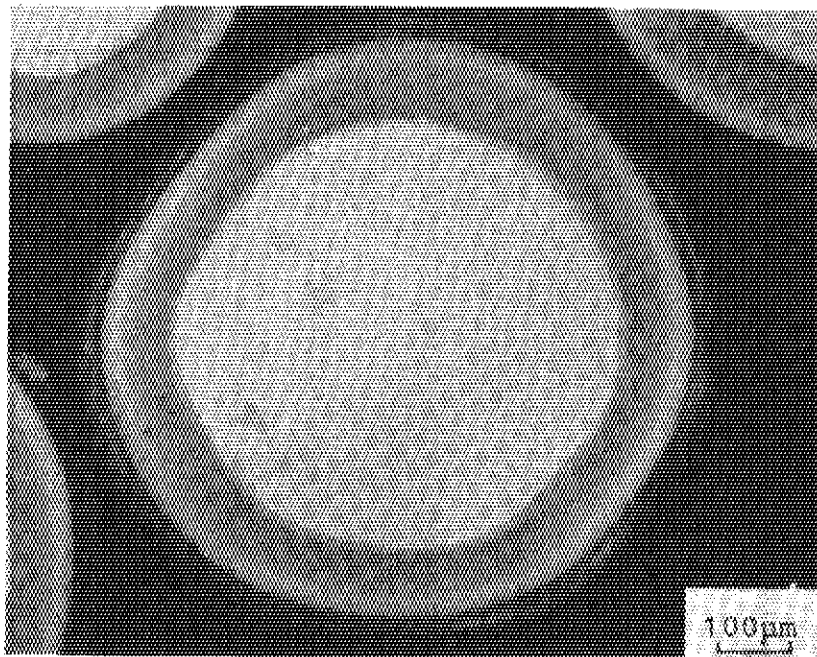
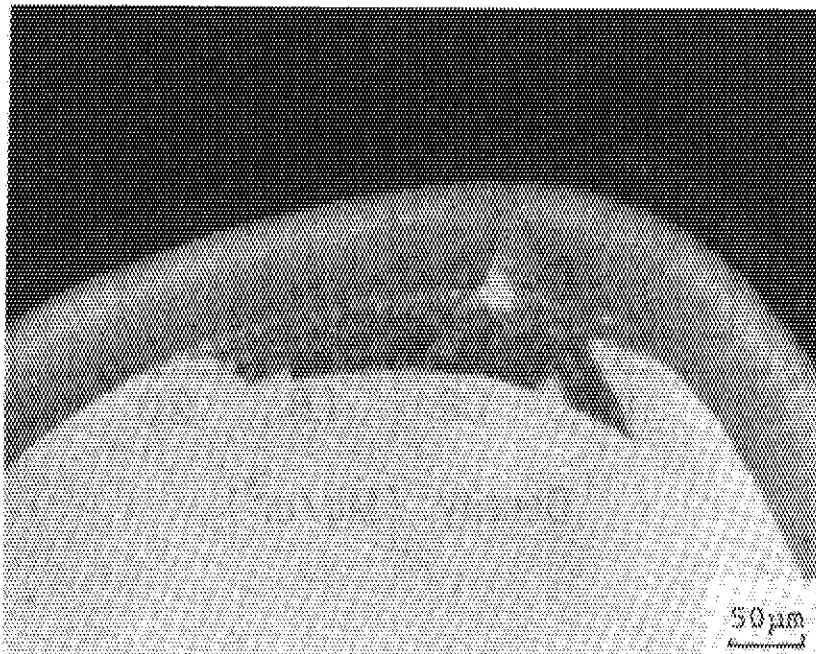


Fig. 6 Relation between methylene iodide intrusion into OPyC layers and deposition conditions of OPyC layers.

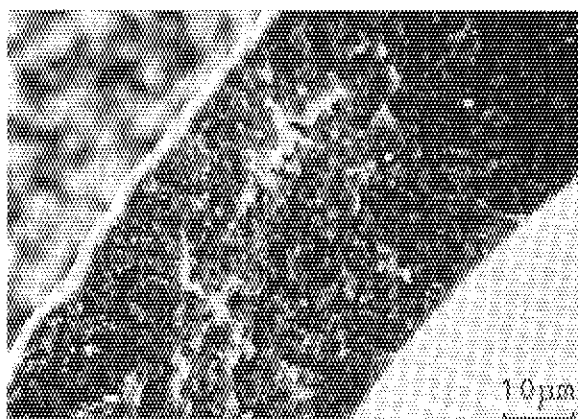


(a)



(b)

Fig. 7 X-ray micro-radiographs of IPyC-SiC failed particles with methylene iodide intrusion into OPyC layers.



(a)

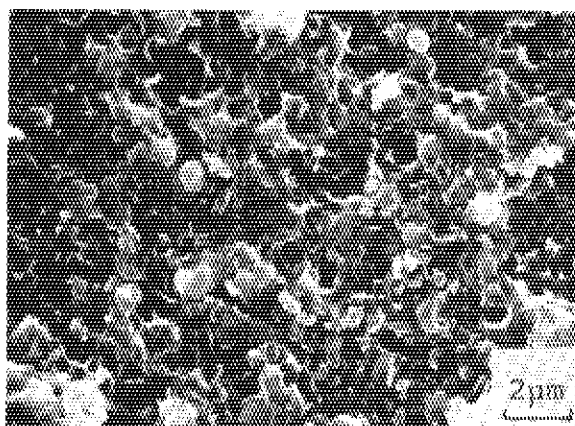


(b)

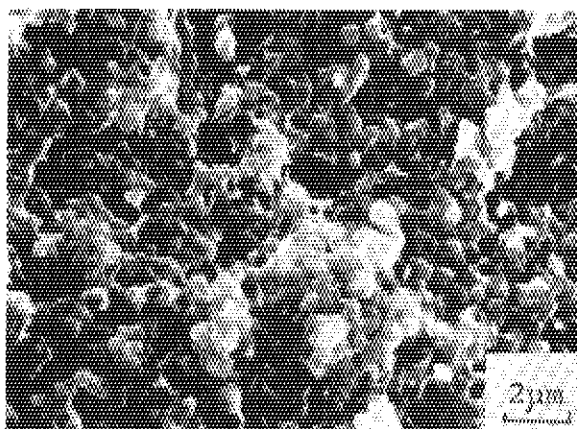


(c)

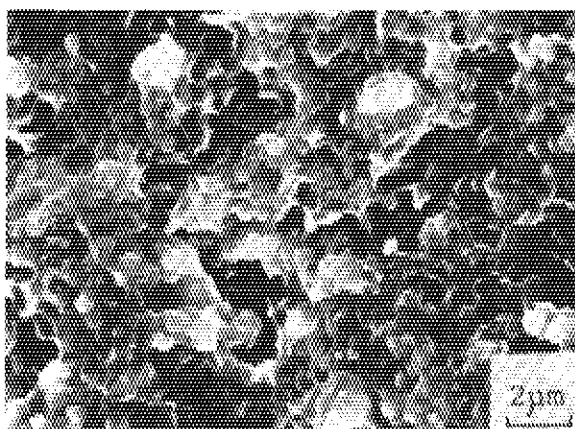
Fig. 8 Scanning electron micrographs of OPyC layers of sample G-090. (a) Fracture surface; (b) Fracture surface; (c) Outer surface.



(a)



(b)



(c)

Fig. 9 Scanning electron micrographs of fracture surface of OPyC layers. (a) Sample PyC0516; (b) Sample G-113; (c) Sample PyC0118.

4. 結 論

ヨウ化メチレンの浸入をX線ラジオグラフで観察することにより、貫通破損粒子および高密度PyC層の欠陥の検出を試みた。また、この方法を種々の試料について適用し、高密度PyC層の欠陥について調べた。その結果、つぎの結論を得た。

- (1) ヨウ化メチレン法により、貫通破損粒子および高密度PyC層の欠陥を検出できることが確認された。
- (2) ヨウ化メチレン法により検出された高密度PyC層の欠陥は、従来の硝酸浸出法、塩素化法などでは検出できないものである。
- (3) ヨウ化メチレンが浸入する欠陥は、現在の仕様を満たすPyC層にも検出された。欠陥のないPyC層を製造するには、蒸着条件の改善が必要である。

謝 辞

本研究を実施するにあたり、御激励下さった燃料工学部長近藤達男氏に感謝致します。また、有益な御助言を下さった燃料照射研究室の各位に感謝致します。

4. 結 論

ヨウ化メチレンの浸入をX線ラジオグラフで観察することにより、貫通破損粒子および高密度PyC層の欠陥の検出を試みた。また、この方法を種々の試料について適用し、高密度PyC層の欠陥について調べた。その結果、つぎの結論を得た。

- (1) ヨウ化メチレン法により、貫通破損粒子および高密度PyC層の欠陥を検出できることが確認された。
- (2) ヨウ化メチレン法により検出された高密度PyC層の欠陥は、従来の硝酸浸出法、塩素化法などでは検出できないものである。
- (3) ヨウ化メチレンが浸入する欠陥は、現在の仕様を満たすPyC層にも検出された。欠陥のないPyC層を製造するには、蒸着条件の改善が必要である。

謝 辞

本研究を実施するにあたり、御激励下さった燃料工学部長近藤達男氏に感謝致します。また、有益な御助言を下さった燃料照射研究室の各位に感謝致します。

参 考 文 献

- (1) O. M. Stansfield, Gulf-GA-B12238 (1972).
- (2) 湊 和生, 他, JAERI-M 86-083 (1986).
- (3) HTGR Fuel Technology Program Semiannual Report, GA-A-16919 (1982).
- (4) HTGR Fuel Technology Program Semiannual Report, GA-A-17110 (1983).
- (5) 飛田 勉, 岩本多實, JAERI-M 5265 (1973).
- (6) D. E. LaValle et al., ORNL/TM-5483 (1976).
- (7) 小川 徹, 他, JAERI-M 8072 (1979).
- (8) E. E. Anderson et al., Nucl. Technol., 11, 259 (1971).
- (9) 飛田 勉, 他, 日本原子力学会分科会発表, E 48 (1984).
- (10) W. J. Kovacs, J. Am. Ceram. Soc., 65, 154 (1982).
- (11) D. P. Stinton et al, Am. Ceram. Soc. Bull., 61, 245 (1982).
- (12) B. A. Thiele et al., ORNL/TM-6696 (1979).
- (13) C. S. Morgan, ORNL/TM-6819 (1979).
- (14) E. Pollmann et al., Nucl. Technol., 35, 301 (1977).
- (15) D. P. Harmon and C. B. Scott, Nucl. Technol., 35, 343 (1977).