

JAERI-Review

96-008



岩石型燃料のスエリングの検討

1996年7月

大道 敏彦

日本原子力研究所  
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、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。  
入手の問い合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）にて、  
お申し越しください。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）で複写による実費領布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

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

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1996

編集兼発行 日本原子力研究所  
印刷 ニッセイエプロ株式会社

岩石型燃料のスエリングの検討

日本原子力研究所東海研究所安定化プルトニウム燃料・燃焼法研究特別チーム  
大道 敏彦

(1996年6月17日受理)

岩石型燃料を構成している安定化ジルコニア、 $\alpha$ アルミナ及びスピネルの、この燃料の炉内寿命中における中性子並びに核分裂片による損傷を基に評価した。中性子照射についてはアルミナで若干のスエリングが起こすが、対損傷性に優れたジルコニア並びにスピネルと同様に結晶の安定性は保たれる。核分裂片による損傷については、アルミナは燃料の低い温度領域で非晶質化に伴う大きなスエリングが起こり、スピネルでも非晶質化によるかなりのスエリングの可能性がある。これに対してジルコニアは構造安定性が維持される。燃料ふるまいに負の影響の可能性のある非晶質部分の体積を少なくするためには、プルトニウムを含む安定化ジルコニアの大きな径の粒子をマトリックスのアルミナ、スピネル中に分散することが効果的であることを提案するとともに、この様な燃料ペレットのスエリングと熱伝導度を評価した。

Assesment for Swelling of Rock-like Fuel by Irradiation

Toshihiko OHMACHI

Excess Plutonium Disposition Fuel Research and Development Team  
Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received June 17, 1996)

Radiation damage of stabilised zirconia, alumina and spinel, components of the rock-like fuel, by neutron and fission fragment in their fuel life are reviewed and evaluated. For neutron irradiation, alumina shows some extent of swelling, though its structure stability is maintained. Zirconia and spinel have good irradiation resistance to neutron. As for the damage by fission fragment, the structure of alumina is destroyed due to amorphization, which cause a large volume swelling in low temperature region of the fuel. Spinel also could be amorphous by fission fragment damage and be accompanied with a significant swelling. On the contrary, zirconia has an excellent stability to fission fragment. For the purpose of minimizing the volume of alumina and spinel damaged by fission fragment, which ought to have negative effects to the fuel performance, large diameter particles of zirconia containing plutonium would be needed to be dispersed in alumina and spinel. A tentative evaluation is made on behavior of swelling and thermal conductivity of the fuel pellets containing large diameter zirconia.

Keywords : Alumina, Spinel, Stabilised Zirconia, Plutonium, Radiation Damage, Fission Fragment, Dispersion Fuel

## 目 次

1. はじめに .....	1
2. 中性子による照射損傷 .....	1
3. 核分裂片による照射損傷.....	2
4. 岩石型燃料の原子炉内での照射損傷の評価 .....	4
4.1 $Al_2O_3$ 及び $MgAl_2O_4$ の非晶質化 .....	4
4.2 安定化 $ZrO_2$ 相粒子の分散形態が燃料の損傷に及ぼす効果 .....	5
5. まとめ .....	7
参考文献 .....	8

## Contents

1. Introduction.....	1
2. Irradiation Damage by Neutron .....	1
3. Irradiation Damage by Fission fragment.....	2
4. Irradiation Damage of Rock-like Fuel in Reactor .....	4
4.1 Amorphization of $Al_2O_3$ and $MgAl_2O_4$ .....	4
4.2 Effect of Dispersion of Stabilised $ZrO_2$ Particles to Damage of the Fuel.....	5
5. Summary .....	7
References.....	8

## 1. はじめに

核兵器用を含む余剰プルトニウムの燃焼・処分、並びにアクチノイドの生成の抑制のためにUフリーの核分裂性物質を核的に不活性な（イナート）物質に分散した燃料とその燃焼の研究が各国で進められている。イナート物質には融点の高い物質が望ましく、セラミックスの場合は $\alpha$ -アルミナ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )、マグネシア( $\text{MgO}$ )、スピネル( $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ )、ジルコニア( $\text{ZrO}_2$ )、ベリリア( $\text{BeO}$ )並びにセリア( $\text{CeO}_2$ )等が候補に挙げられている。最適なセラミックス材料の選択は使用される原子炉の種類、燃料の形態、また使用済燃料をどうするか等によるが、残念ながら現在のところ、分散燃料用イナート物質の抽出は未完成の状況にある。この原因のかなりの部分はイナート物質の照射損傷の問題にあると考えられる。

我が国では、余剰プルトニウムをほぼ完全に燃焼させ、核的価値を失った使用済燃料は再処理をせず直接地中処分するという意図から、核分裂物質であるプルトニウムを二酸化プルトニウム( $\text{PuO}_2$ )として安定化 $\text{ZrO}_2$ に固溶させ、これを $\text{Al}_2\text{O}_3$ 並びに $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ に分散させた岩石型燃料（地球内の安定な岩石成分から多相的に構成されているため、この様に呼ばれている。）を軽水炉で燃焼するという概念が提案されている[1]。なお、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ と $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ がこの燃料の構成化合物に選ばれてのは、これらの化合物により核分裂生成物を安定に捕まえるという意図もあるが、最も大きな理由は熱伝導度の小さい安定化 $\text{ZrO}_2$ の他に熱伝導度の良い $\text{Al}_2\text{O}_3$ と $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ を用いて、燃料の熱伝導度を向上させることにある。現在、この構想の実現のために燃料の諸性質の研究とプルトニウム燃焼法の研究が平行して実施されており、燃料の研究に関しては、燃料を構成する相の平衡関係、使用済模擬燃料を用いての核分裂生成物の相への分布、水への浸出率などの研究に成果が見られる他、原子炉を用いた照射試験、核分裂片損傷を評価するためのイオン照射実験が行われている[2]。

本稿の主目的は岩石型燃料を構成している安定化 $\text{ZrO}_2$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 並びに $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ の中性子や核分裂片による過去の損傷研究結果を概観し、想定される燃料寿命中における照射損傷を評価することである。上に記した現在進行中の岩石型燃料の照射損傷の研究からの結果からも、新たな評価がなされるであろうが、岩石型燃料の照射挙動の評価は過去の諸研究からある程度できる。後で示すように、本稿では岩石型燃料の厳しい核分裂片損傷の可能性が導かれるが、この損傷領域をなるべく小さくするために $\text{PuO}_2$ を含有する $\text{ZrO}_2$ 相粒子の分散状態等について考察することも本稿のもう一つの目的である。

## 2. 中性子による照射損傷

結晶に点欠陥が導入されると、結晶の格子定数や体積の増加(スエリング)が起こる。Fig. 1及び2は $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ 、安定化 $\text{ZrO}_2$ (6wt%  $\text{Y}_2\text{O}_3$ )の他、諸セラミックスを主にEBR-2及びETRを用いて照射( $E > 0.1\text{MeV}$ )して得られたスエリングの結果が図示されたものである[3]。各個のデータの出典は文献[3]を参照されたい。スエリングと照射量の関係を示すFig. 1より、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ のスエリングは照射量に比例して増加し、約 $10^{22}\text{n/cm}^2$ で4~9%程度の値となる。 $\text{BeO}$ を

## 1. はじめに

核兵器用を含む余剰プルトニウムの燃焼・処分、並びにアクチノイドの生成の抑制のためにUフリーの核分裂性物質を核的に不活性な（イナート）物質に分散した燃料とその燃焼の研究が各国で進められている。イナート物質には融点の高い物質が望ましく、セラミックスの場合は $\alpha$ -アルミナ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )、マグネシア( $\text{MgO}$ )、スピネル( $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ )、ジルコニア( $\text{ZrO}_2$ )、ベリリア( $\text{BeO}$ )並びにセリア( $\text{CeO}_2$ )等が候補に挙げられている。最適なセラミックス材料の選択は使用される原子炉の種類、燃料の形態、また使用済燃料をどうするか等によるが、残念ながら現在のところ、分散燃料用イナート物質の抽出は未完成の状況にある。この原因のかなりの部分はイナート物質の照射損傷の問題にあると考えられる。

我が国では、余剰プルトニウムをほぼ完全に燃焼させ、核的価値を失った使用済燃料は再処理をせず直接地中処分するという意図から、核分裂物質であるプルトニウムを二酸化プルトニウム( $\text{PuO}_2$ )として安定化 $\text{ZrO}_2$ に固溶させ、これを $\text{Al}_2\text{O}_3$ 並びに $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ に分散させた岩石型燃料（地球内の安定な岩石成分から多相的に構成されているため、この様に呼ばれている。）を軽水炉で燃焼するという概念が提案されている[1]。なお、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ と $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ がこの燃料の構成化合物に選ばれてのは、これらの化合物により核分裂生成物を安定に捕まえるという意図もあるが、最も大きな理由は熱伝導度の小さい安定化 $\text{ZrO}_2$ の他に熱伝導度の良い $\text{Al}_2\text{O}_3$ と $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ を用いて、燃料の熱伝導度を向上させることにある。現在、この構想の実現のために燃料の諸性質の研究とプルトニウム燃焼法の研究が平行して実施されており、燃料の研究に関しては、燃料を構成する相の平衡関係、使用済模擬燃料を用いての核分裂生成物の相への分布、水への浸出率などの研究に成果が見られる他、原子炉を用いた照射試験、核分裂片損傷を評価するためのイオン照射実験が行われている[2]。

本稿の主目的は岩石型燃料を構成している安定化 $\text{ZrO}_2$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 並びに $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ の中性子や核分裂片による過去の損傷研究結果を概観し、想定される燃料寿命中における照射損傷を評価することである。上に記した現在進行中の岩石型燃料の照射損傷の研究からの結果からも、新たな評価がなされるであろうが、岩石型燃料の照射挙動の評価は過去の諸研究からある程度できる。後で示すように、本稿では岩石型燃料の厳しい核分裂片損傷の可能性が導かれるが、この損傷領域をなるべく小さくするために $\text{PuO}_2$ を含有する $\text{ZrO}_2$ 相粒子の分散状態等について考察することも本稿のもう一つの目的である。

## 2. 中性子による照射損傷

結晶に点欠陥が導入されると、結晶の格子定数や体積の増加(スエリング)が起こる。Fig. 1及び2は $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ 、安定化 $\text{ZrO}_2$ (6wt%  $\text{Y}_2\text{O}_3$ )の他、諸セラミックスを主にEBR-2及びETRを用いて照射( $E > 0.1\text{MeV}$ )して得られたスエリングの結果が図示されたものである[3]。各個のデータの出典は文献[3]を参照されたい。スエリングと照射量の関係を示すFig. 1より、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ のスエリングは照射量に比例して増加し、約 $10^{22}\text{n/cm}^2$ で4~9%程度の値となる。 $\text{BeO}$ を

除く他のセラミックスのスエリングは比較的小さく同程度の照射量で2%以下の値となっている。また、 $MgAl_2O_4$  ではほとんどスエリングが認められない。この $MgAl_2O_4$  のスエリングの小さい原因はこの物質が持つ構造空孔にあると考えられている。

セラミックスでは照射効果を示すデータは少ないが、Fig. 2でみる限り、スエリングが最大となる温度は $Al_2O_3$ で約1100K、安定化 $ZrO_2$ では約900Kである。 $MgAl_2O_4$ ではスエリング自体が小さいこともあり温度依存性は明確ではない。 $Al_2O_3$ と安定化 $ZrO_2$ でのスエリングが最大となる温度はそれぞれ0.5及び0.3 $T_m$  ( $T_m$  融点 (K)) であり金属材料(0.3~0.5 $T_m$ )の場合とはほぼ同じ範囲にある。セラミックスで体積増加や伸びを生じる機構は、照射により導入された格子欠陥による結晶格子の膨張、及び格子欠陥のうちの空孔やHe、H等が集合してできるポイドやバブルの形成にある。低温低照射量では、格子膨張が体積増加が主な原因であり、格子定数の増加から得られる体積増加はマクロなスエリングとほぼ等しくなる。高温高照射量の場合は格子の膨張とは無関係になり、ポイドの形成と成長によりスエリングが起こる。前出の0.3~0.5 $T_m$ の大きなスエリングはポイドスエリングによるものである。

$Al_2O_3$ と $MgAl_2O_4$ の925~1100Kで中性子照射した室温の熱拡散率の照射量依存性をFig. 3に示す[4]。 $Al_2O_3$ では単結晶、多結晶とも照射量とともに熱拡散率は減少し、 $10^{26}n/m^2$ 近くの照射量になると多結晶では照射前の30~20%の値になる。他方、単結晶 $MgAl_2O_4$ では、ほとんど熱拡散率の減少は見られない。これは構造空孔とはじき出し原子の再結合により、点欠陥の蓄積が抑制されるためである。しかし多結晶では結晶粒界近傍に点欠陥集合体が形成され、これがフォノンの散乱中心となり熱拡散率はいくぶん減少するとされている。

以上、スエリングと熱拡散率の中性子照射効果について概観した。これら以外にも、例えば強度特性等にも触れる必要があるが、データ自体が少なく系統的説明は困難である。岩石型燃料を構成するセラミックスの中性子照射の効果を結論的に述べれば、 $Al_2O_3$ は比較的損傷は大きい、 $MgAl_2O_4$ は優れた耐損傷性を持っていると言える。また、安定化 $ZrO_2$ も耐損傷性があると言える。

### 3. 核分裂片による照射損傷

酸化物セラミックスの核分裂片損傷に関する基礎的データは $UO_2$ を除いては非常に少ない。むしろ軽水炉全盛とも言える現在よりも、その創生の年代であった30~40年前に分散型燃料のマトリックスとしての $Al_2O_3$ 、 $BeO$ 、 $ZrO_2$ 等の核分裂片損傷の研究結果が多い。Lustman による $UO_2$ 燃料の照射効果の解説[5]の中における $Al_2O_3$ 、 $ZrO_2$ の損傷に関する記述は非常に参考になる。

$Al_2O_3$ の核分裂片損傷についてはBerman et. al[6]による結果が示唆的である。Fig. 4に彼らによる $Al_2O_3$ と21wt. % $UO_2$ の焼結混合体を原子炉で照射した時の密度の減少を示す[6]。なお、この実験並びに後でも示す $ZrO_2$ 等との実験には板状焼結体試料が使用され、照射中の試料表面の温度は約400°Cである。0.9~10.8 x  $10^{20}$  fissions/ccの照射試料で、約18%のほぼ一定の密度減少が観測されている。Fig. 5は照射後試料の顕微鏡写真である。照射前に連続的な相を形成しながら明確な粒界を示していた $Al_2O_3$ 相は照射後(10.8 x  $10^{20}$  fissions/cc)では結晶粒界は



除く他のセラミックスのスエリングは比較的小さく同程度の照射量で2%以下の値となっている。また、 $MgAl_2O_4$  ではほとんどスエリングが認められない。この $MgAl_2O_4$  のスエリングの小さい原因はこの物質が持つ構造空孔にあると考えられている。

セラミックスでは照射効果を示すデータは少ないが、Fig. 2でみる限り、スエリングが最大となる温度は $Al_2O_3$ で約1100K、安定化 $ZrO_2$ では約900Kである。 $MgAl_2O_4$ ではスエリング自体が小さいこともあり温度依存性は明確ではない。 $Al_2O_3$ と安定化 $ZrO_2$ でのスエリングが最大となる温度はそれぞれ0.5及び0.3 $T_m$  ( $T_m$  融点 (K)) であり金属材料(0.3~0.5 $T_m$ )の場合とはほぼ同じ範囲にある。セラミックスで体積増加や伸びを生じる機構は、照射により導入された格子欠陥による結晶格子の膨張、及び格子欠陥のうちの空孔やHe、H等が集合してできるポイドやバブルの形成にある。低温低照射量では、格子膨張が体積増加が主な原因であり、格子定数の増加から得られる体積増加はマクロなスエリングとほぼ等しくなる。高温高照射量の場合は格子の膨張とは無関係になり、ポイドの形成と成長によりスエリングが起こる。前出の0.3~0.5 $T_m$ の大きなスエリングはポイドスエリングによるものである。

$Al_2O_3$ と $MgAl_2O_4$ の925~1100Kで中性子照射した室温の熱拡散率の照射量依存性をFig. 3に示す[4]。 $Al_2O_3$ では単結晶、多結晶とも照射量とともに熱拡散率は減少し、 $10^{26}n/m^2$ 近くの照射量になると多結晶では照射前の30~20%の値になる。他方、単結晶 $MgAl_2O_4$ では、ほとんど熱拡散率の減少は見られない。これは構造空孔とはじき出し原子の再結合により、点欠陥の蓄積が抑制されるためである。しかし多結晶では結晶粒界近傍に点欠陥集合体が形成され、これがフォノンの散乱中心となり熱拡散率はいくぶん減少するとされている。

以上、スエリングと熱拡散率の中性子照射効果について概観した。これら以外にも、例えば強度特性等にも触れる必要があるが、データ自体が少なく系統的説明は困難である。岩石型燃料を構成するセラミックスの中性子照射の効果を結論的に述べれば、 $Al_2O_3$ は比較的損傷は大きい、 $MgAl_2O_4$ は優れた耐損傷性を持っていると言える。また、安定化 $ZrO_2$ も耐損傷性があると言える。

### 3. 核分裂片による照射損傷

酸化物セラミックスの核分裂片損傷に関する基礎的データは $UO_2$ を除いては非常に少ない。むしろ軽水炉全盛とも言える現在よりも、その創生の年代であった30-40年前に分散型燃料のマトリックスとしての $Al_2O_3$ 、 $BeO$ 、 $ZrO_2$ 等の核分裂片損傷の研究成果が多い。Lustmanによる $UO_2$ 燃料の照射効果の解説[5]の中における $Al_2O_3$ 、 $ZrO_2$ の損傷に関する記述は非常に参考になる。

$Al_2O_3$ の核分裂片損傷についてはBerman et. al[6]による結果が示唆的である。Fig. 4に彼らによる $Al_2O_3$ と21wt. % $UO_2$ の焼結混合体を原子炉で照射した時の密度の減少を示す[6]。なお、この実験並びに後でも示す $ZrO_2$ 等との実験には板状焼結体試料が使用され、照射中の試料表面の温度は約400°Cである。0.9~10.8 x  $10^{20}$  fissions/ccの照射試料で、約18%のほぼ一定の密度減少が観測されている。Fig. 5は照射後試料の顕微鏡写真である。照射前に連続的な相を形成しながら明確な粒界を示していた $Al_2O_3$ 相は照射後(10.8 x  $10^{20}$  fissions/cc)では結晶粒界は

見られず、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ マトリックス中に照射前には存在していた気孔は消失しており、また、全体的に照射前の構造組織が破壊され、照射中には塑性流動が起こった形跡まで見える。Fig. 6は照射量  $2 \times 10^{16}$  fissions/cc におけるX線回折結果を照射前のものと対比して示したものである。照射後には $\text{UO}_2$ のピークのみ観察され、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ のピークは消失している。これらにより彼ら[6]は $\text{Al}_2\text{O}_3$ の結晶格子は破壊されて非晶質化し、これに伴い大きなスエリングがもたらされたと結論づけている。また、燃料全体の18%の密度減少が $\text{Al}_2\text{O}_3$ のスエリングによるとすれば、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ の密度は約30%減少したことになり、しかもそれは照射初期に起こることになる。

$\text{ZrO}_2$ に関しては、 $\text{ZrO}_2$ -13CaO-17 $\text{UO}_2$ 焼結体の照射結果がBesman et al. [6]並びにYanniscavin and Bleibelg [7]により報告されている。これらのうちで最も核分裂片の積算密度が大きい場合 ( $10.8 \times 10^{20}$  fissions/cc) でもスエリングは無視できる程度であり、cubic 安定化 $\text{ZrO}_2$ 相の結晶構造は保持されている[7]。なお、この報告における照射前の試料にはcubic 安定化 $\text{ZrO}_2$ 相以外にもtetragonal  $\text{ZrO}_2$ 相並びにorthorhombic  $\text{CaZrO}_3$ 相が存在していたが、照射により $\text{CaZrO}_3$ 相の非晶質化とtetragonal 相の消失、即ち相変態が起こっていた。また、この文献には、 $\text{ZrO}_2$ にCaOをを加えず $\text{CaZrO}_3$ が存在しない場合には $15 \times 10^{20}$  fissions/cc 迄の $\text{ZrO}_2$ - $\text{UO}_2$ 燃料の照射健全性を保障できるであろうと述べている。なお、 $\text{ZrO}_2$ における照射に誘起される相変態の事実は、核分裂片による時ばかりでなく中性子照射によっても起こることが知られている [8, 9]。

原子炉の中で $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ 燃料物質と共存させて照射し、核分裂片の損傷効果を調べた公表例は現在のところ見当たらない。しかし、中性子照射に強い $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ がイナート物質の有力候補であることから、核分裂片損傷に関する研究がカナダ、欧州等で現在実施されている。Matzke[10]によれば、 $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ に核分裂片を模擬した72MeV のIイオンを照射した場合、 $10^{17}$  ions/cm<sup>2</sup>の照射量でイオンの照射領域面に約20%の高さ増加が観測されており、また、この照射量でも膨張は飽和していないとのことである。

核分裂エネルギーに相当した重イオンの照射が核分裂片損傷を良く模擬できることは、以下の $\text{Al}_2\text{O}_3$ に関する結果によって実証される。 $\text{Al}_2\text{O}_3$ に72MeV のIイオンを照射した結果がMatzkeにより報告されている[11]。これによれば、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ は照射量 $10^{15} \sim 10^{17}$  ions/cm<sup>2</sup>の範囲でイオン照射面の高さは $1.76 \mu\text{m}$ 増加した。この量は、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 中の72MeV のIイオンのレンジは $7.6 \mu\text{m}$ であることから約20%の高さ増加に対応している。また、イオンレンジ内の領域は完全に非晶質化していた。イオン照射の場合は実際の原子炉内照射とは異なり、損傷物質は一方向にのみ体積変化をもたらすため、自由スエリングの大きさを定量的に導くのは困難である面があるが、彼は $\text{Al}_2\text{O}_3$ のイオン照射による自由スエリングは約30%であると推定し、Berman et al. [6]の結果と良く対応した値を提示している。

$\text{MgAl}_2\text{O}_4$ と $\text{Al}_2\text{O}_3$ の重イオン照射の結果を比較すると、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ のスエリングは $10^{15}$  ions/cm<sup>2</sup>の照射量で飽和するのに対して、 $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ は $10^{17}$  ions/cm<sup>2</sup>でも飽和しないという相違があるが、中性子には十分耐性を持つ $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ も核分裂片に対して耐性があると言えず相当のスエリングが起こる可能性が大きい。また、イオン照射による $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ の大きなスエリングは、格子欠陥の生成や凝集、ボイド成長等では説明することはできず、非晶質化に原因を求めざるをえない。何故ならば結晶質から非晶質への相転移に伴う体積変化は、非晶質が液体に近い構造を持つことから固体から液体への転移に伴う大きな体積膨張に近いと考えられるからである。

以上の様に、 $ZrO_2$ を除けば $Al_2O_3$ も $MgAl_2O_4$ も核分裂片エネルギーを持ったイオンに対しては損傷は大きく、従って燃料のマトリックスの使用に関しては注意する必要がある。

#### 4. 岩石型燃料の原子炉内での照射損傷の評価

##### 4.1 $Al_2O_3$ 及び $MgAl_2O_4$ の非晶質化

核分裂片損傷により大きなスエリングを示した $Al_2O_3$ の結果[6]は照射温度が $400^\circ C$ 程度のこ現象である。しかし、より高い温度での照射では損傷、この場合は非晶質化、の度合いは制限される。被照射体の温度がどの程度であれば照射により非晶質化が起こらないかという問題は非常に複雑である。

エネルギーの高い重イオンの照射による非金属固体の非晶質化に関するモデルには Bond-type criterion、Crystal-structure criterion や Temperature-ratio criterion等[12]がある。この中で、比較的に物理的実体性があると思われるのはTemperature-ratio criterion モデルである。また、このモデルはThermal spike model [13]とも呼ばれる。このモデルの要点は以下の様である。結晶に重イオンが入射するとまず、格子の歪み、変位スパイク、液体状態の凍結等により乱れた結晶領域が導入される。熱伝導性に劣る酸化物の場合には、局部的に融解した領域が、融点以下に凍結された準安定状態—非晶質状態—で形成される。次の段階はこの凍結状態がそのまま残るか、取り除かれるかが問題になる。局部領域温度が融点、 $T_m$ 、から巨視的な被照射体物質全体の温度、 $T_0$ 、近くまでに冷却される実効時間を $t_{eff}$ 、非晶質の結晶化に伴う拡散係数を $D$ 、とし、また $\lambda$ を平均的な原子間距離とした場合、非晶質領域とこれを取り囲む結晶質領域の境界が $t_{eff}$  の間に非晶質側に動く距離、 $D \cdot t_{eff} / \lambda$ 、が $\lambda$ より大きい場合には非晶質は取り除かれる。以上がモデルの出発点であるが結論は次の様である。対象物質の  $T_c / T_m$  ( $T_c$  : 結晶化温度。非晶質体を温度を上昇させた行った時、結晶質に変化する温度。非晶質薄膜を電子顕微鏡内で加熱したり、非晶質体中からの気体の放出を観察するなどにより決められている。) をある値、 $A^*$ 、と比較して、 $T_c / T_m > A^*$  の時には非晶質化が起こり、逆に $T_c / T_m < A^*$  の時には非晶質化しない。なお、 $A^*$  はモデルにより計算でも得られるが、この値には諸物質の実験結果とあわせておおよそ0.3 であることが提唱されている。

$Al_2O_3$ の  $T_c$  は  $640^\circ C$ [14] 或いは  $750^\circ C$ [15] と報告されている。これから $Al_2O_3$ は非晶質化する物質に分類される( $T_c / T_m = 0.39$  或いは  $0.43$ )。  $ZrO_2$ の  $T_c$  は  $530^\circ C$ [13]であり、非晶質化しない物質に分類される( $T_c / T_m = 0.27$ )。

しかし、この分類は被照射体の温度が室温程度の場合のことであり、温度が高い場合には非晶質化し得る物質も結晶のままに残る。まず、ターゲットの温度が結晶化温度より高い場合には非晶質化は起こらないと考えて良いだろう。また結晶化温度以下の照射でも上記の実効時間  $t_{eff}$  は  $T_0$  が高くなれば大きくなるため、非晶質化しない可能性がある。非晶質化を避けられる被照射体の温度を定めることは単純ではないが、 $Al_2O_3$ の場合には結晶化温度を考慮して、また、以下の論議を進めるために約  $600^\circ C$  と設定する。なお、Lustman による解説[5] にも $Al_2O_3$ を分散

以上の様に、 $ZrO_2$ を除けば $Al_2O_3$ も $MgAl_2O_4$ も核分裂片エネルギーを持ったイオンに対しては損傷は大きく、従って燃料のマトリックスの使用に関しては注意する必要がある。

#### 4. 岩石型燃料の原子炉内での照射損傷の評価

##### 4.1 $Al_2O_3$ 及び $MgAl_2O_4$ の非晶質化

核分裂片損傷により大きなスエリングを示した $Al_2O_3$ の結果[6]は照射温度が $400^\circ C$ 程度のこ現象である。しかし、より高い温度での照射では損傷、この場合は非晶質化、の度合いは制限される。被照射体の温度がどの程度であれば照射により非晶質化が起こらないかという問題は非常に複雑である。

エネルギーの高い重イオンの照射による非金属固体の非晶質化に関するモデルには Bond-type criterion、Crystal-structure criterion や Temperature-ratio criterion等[12]がある。この中で、比較的に物理的実体性があると思われるのはTemperature-ratio criterion モデルである。また、このモデルはThermal spike model [13]とも呼ばれる。このモデルの要点は以下の様である。結晶に重イオンが入射するとまず、格子の歪み、変位スパイク、液体状態の凍結等により乱れた結晶領域が導入される。熱伝導性に劣る酸化物の場合には、局部的に融解した領域が、融点以下に凍結された準安定状態—非晶質状態—で形成される。次の段階はこの凍結状態がそのまま残るか、取り除かれるかが問題になる。局部領域温度が融点、 $T_m$ 、から巨視的な被照射体物質全体の温度、 $T_0$ 、近くまでに冷却される実効時間を $t_{eff}$ 、非晶質の結晶化に伴う拡散係数を $D$ 。とし、また $\lambda$ を平均的な原子間距離とした場合、非晶質領域とこれを取り囲む結晶質領域の境界が $t_{eff}$  の間に非晶質側に動く距離、 $D \cdot t_{eff} / \lambda$ 、が $\lambda$ より大きい場合には非晶質は取り除かれる。以上がモデルの出発点であるが結論は次の様である。対象物質の  $T_c / T_m$  ( $T_c$  : 結晶化温度。非晶質体を温度を上昇させた行った時、結晶質に変化する温度。非晶質薄膜を電子顕微鏡内で加熱したり、非晶質体中からの気体の放出を観察するなどにより決められている。) をある値、 $A^*$ 、と比較して、 $T_c / T_m > A^*$  の時には非晶質化が起こり、逆に $T_c / T_m < A^*$  の時には非晶質化しない。なお、 $A^*$  はモデルにより計算でも得られるが、この値には諸物質の実験結果とあわせておおよそ0.3 であることが提唱されている。

$Al_2O_3$ の  $T_c$  は  $640^\circ C$ [14] 或いは  $750^\circ C$ [15] と報告されている。これから $Al_2O_3$ は非晶質化する物質に分類される( $T_c / T_m = 0.39$  或いは  $0.43$ )。  $ZrO_2$ の  $T_c$  は  $530^\circ C$ [13]であり、非晶質化しない物質に分類される( $T_c / T_m = 0.27$ )。

しかし、この分類は被照射体の温度が室温程度の場合のことであり、温度が高い場合には非晶質化し得る物質も結晶のままに残る。まず、ターゲットの温度が結晶化温度より高い場合には非晶質化は起こらないと考えて良いだろう。また結晶化温度以下の照射でも上記の実効時間  $t_{eff}$  は  $T_0$  が高くなれば大きくなるため、非晶質化しない可能性がある。非晶質化を避けられる被照射体の温度を定めることは単純ではないが、 $Al_2O_3$ の場合には結晶化温度を考慮して、また、以下の論議を進めるために約  $600^\circ C$  と設定する。なお、Lustman による解説[5] にも $Al_2O_3$ を分散

型燃料のマトリックスに用いる時には、600°C以下での使用は避ける必要があることが指摘されている。

MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>の結晶化温度についての報告はない。MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>はAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>とMgOの複合酸化物である。非晶質となった複合酸化物が再結晶する場合にはT<sub>c</sub>が約200°C[16]のMgOが先に析出することが予想され、最初からMgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>が結晶として現れることはなく、複雑な事象が伴うであろう。相手方のAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の結晶化がMgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>の再結晶化に必要なとするならば、大変粗い考え方ではあるが、MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>で非晶質化が避けられる照射温度はAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>と同程度と考えて良いだろう。

#### 4.2 安定化ZrO<sub>2</sub>相粒子の分散形態が燃料の損傷に及ぼす効果

現在の軽水炉では燃料の温度は低めに抑えられる傾向にある。現行PWRの平均線出力である180W/cmにおける燃料温度を評価すると以下の様になる。燃料の被覆管のギャップコンダクタンスに0.567W/cm<sup>2</sup>°C(1000BTU/ft<sup>2</sup>hr F)を用い、冷却水温度を300°C、燃料ペレット直径を9mmとした場合の燃料ペレット表面の温度は445°Cと算出される。UO<sub>2</sub>の熱伝導度式にはAsamotoの式[17]を採用するとペレットの中心温度は815°Cになる。この場合のペレット径方向温度分布から前にAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>とMgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>が非晶質化を避けられると設定した600°Cより低い温度となる領域のはペレット全体の体積の42%を占める。また、非晶質化しない温度を更に低い550°Cと仮定した場合でも28%を占める。この事実は次の事を意味する。岩石型燃料の熱伝導度が明確でないため、この燃料でのペレット径方向分布には不明な点があるが、UO<sub>2</sub>燃料のそれとあまり違わないとした場合には、原子炉内燃料の相当な領域にあるAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>とMgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>は非晶質になる。

元々結晶質であった物質が非晶質化することは、燃料ペレットが被覆管に収められている様な燃料形態では、次の様な理由により種々な問題を生じるであろう。

— 非晶質化に伴う体積膨張は著しく大きく、被覆管との機械的相互作用に悪い影響をもたらすとともに、また局所的な非晶質化による体積変化は周囲の結晶部分に歪みを生じ、ペレットの割れと、場合によっては粉碎化を促進させる原因となる。

— 非晶質の部分は塑性フローを示す可能性がある。これは被覆管との機械的相互作用の面からは有利な方向に機能することも考えられるが、ペレット形状のインテグリティは損なわれる。

— 非晶質化は熱伝導度の減少をもたらす可能性が強く、燃料の熱設計に影響を与える。

非晶質化を避けるためには、核分裂片損傷に安定な物質のみで燃料を構成することが望まれるが、それが不可能な場合には核分裂片損傷を受ける領域の体積を可能な限り少なくすることが改善の方策である。

このためには核分裂性物質を含む粒子をマトリックス中にどのように分散するか幾何学的考察によって解決される。分散型燃料の挙動に与える幾何学的問題は既にWhite et al. [14]により検討されている。均一直径Dの理想的な核分裂性物質を含む球が、体積割合V<sub>f</sub>を占めてマトリックス中を分散しているならば、損傷を受けるマトリックスは燃料球の周りのλ<sub>m</sub>(核分裂片のマトリックス物質中のレンジ)の厚みの部分のみであるので、核分裂片で損傷を受けないマトリックスの体積割合は次の様に与えられる。

$$\text{損傷を受けないマトリックスの割合} = 1 - \frac{V_f}{1 - V_f} \left[ \left( 1 + \frac{1}{D / 2\lambda_m} \right)^3 - 1 \right]$$

これより、マトリックスの核分裂片による損傷を少なくするためには、Dを大きくすることが有効であることが判る。なお、この式は核分裂性物質を含む球が均一であり、配列に規則性がある場合に得られたものであるが、球が  $2\lambda_m$  の間隔を開けて配列されるならば、上式のDは平均球径であるとしても良い。

今、検討の対象としている  $\text{Al}_2\text{O}_3$  や  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  の  $\lambda_m$  の値はおおよそ  $8\mu\text{m}$  程度である。例えば  $400\mu\text{m}$  の粒径をもつ安定化  $\text{ZrO}_2$  をマトリックス中に分散させれば、 $V_f$  が 0.3、0.4 及び 0.5 の場合の核分裂片損傷をうけるマトリックスの体積割合は 3.7、5.0 及び 6.2% となる。

以上から次の様な提案が可能である。 $\text{PuO}_2$  を含有する安定化  $\text{ZrO}_2$  は大きな粒子とし、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  や  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  中に分散させる。このような岩石型燃料は3つに分類された領域を持つ。 $\text{Pu}$  を含有する安定化  $\text{ZrO}_2$  領域(領域A)、核分裂片損傷を受けるマトリックス領域(領域B)及び核分裂片損傷を受けないマトリックス領域(領域C)である。岩石型燃料中のプルトニウム濃度は  $\text{PuO}_2$  にして約 5モル% が想定されている[1, 2]。この場合、領域Aの積算核分裂密度は、この領域の体積割合  $V_f$  に依存するが、例えば  $V_f$  が 0.4 程度である場合には  $20 \times 10^{20}$  fissions/cc に達する。この値は前記の  $\text{ZrO}_2$  が安定であると考えられる核分裂密度 ( $15 \times 10^{20}$  fissions/cc) を超えるが、核分裂生成物の蓄積による若干の体積膨張を除けば非晶質の様な大きなスエリングの原因となる相の出現がないことが期待できる。領域Bでは、燃料ペレットの低い温度部分では非晶質化し、大きな体積膨張が起こる。しかし、領域Bが燃料ペレットの中で占める割合は 5% 程度なので、仮にペレットの中の全ての領域Bが非晶質化したとしても、ペレットを 1% 程度だけスエリングさせるに過ぎない。領域Cは中性子のみの照射に曝される。 $\text{Al}_2\text{O}_3$  は最大 8% のスエリングが想定されるが、 $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  のそれは殆ど無視できる。 $\text{Al}_2\text{O}_3$  と  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  の比率を適当に選択することによって、領域Cの体積膨張は燃料全体のスエリングへの寄与は 3% 以下に抑えることができるであろう。

$\text{Al}_2\text{O}_3$  と  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  の熱拡散率は中性子照射により減少する。岩石型燃料における中性子の照射量は  $10 \times 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup> 程度になる。前出のFig. 3よりこの照射量では  $\text{Al}_2\text{O}_3$  においても未照射のものに比較しても 30% 程度の減少しか示さない。また、この図は照射前後の室温における熱拡散率の値を比較したものであるので、高温になれば減少率ももっと少なくなる筈である。即ち、領域Cの熱伝導度は照射によって著しく減少することはない。非晶質  $\text{Al}_2\text{O}_3$  及び  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  の熱伝導度については全くデータがないので、領域Bの熱伝導度は推測に頼らざるを得ない。典型的な非結晶体である熔融  $\text{SiO}_2$  やガラスは殆ど温度に依存しない小さな熱伝導度を示す。フォノンによる伝導気孔を考慮すれば、完全な非結晶物質は無秩序な構造のためにフォノンの平均自由行程は原子間距離のオーダーに制限された値を持つと言う事によって説明される。実際、熱伝導度の値から得られる熔融  $\text{SiO}_2$  やガラスの平均自由行程は 4~5A 程度で原子間距離程度である。この事は非晶質物質の熱伝導度は、温度に無関係な数A 程度のフォノン自由行程に支配されることから、物質の如何にかかわらず大体同じ値を示すことになる。即ち、非晶質  $\text{Al}_2\text{O}_3$  及び  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  もガラス

と同程度の $\sim 2\text{W/m}\cdot\text{K}$ の熱伝導度を示すであろう。領域Aにおける安定化 $\text{ZrO}_2$ の熱伝導度の照射効果の報告はない。未照射安定化 $\text{ZrO}_2$ の熱伝導度は広い温度範囲ではほぼ一定の値( $\sim 2\text{W/m}\cdot\text{K}$ )を示す。フォノン平均速度を $6 \times 10^5 \text{ cm/s}$ と評価し、密度、比熱等の値を用いて、フォノン自由行程を計算される熱伝導度の値からは $3.0\text{A}$ が得られる。即ち、この熱伝導度は結晶のもちえる最小に近い値を示している事になる。これは固溶体である安定化 $\text{ZrO}_2$ の複雑な構造に由来していると考えられる。この様な、既に結晶としては最小に近い熱伝導度を持つ物質に中性子や核分裂片が照射された時、熱伝導度は照射前と比較して殆ど変化しないであろう。核分裂生成物原子の分散が自由行程を更に減少させる可能性があるが、核分裂によって生成する原子数は結晶全体の原子数と比較すると極めて小さいため、あまり大きなものならないであろう。

上の様な推論から、大きな径の安定化 $\text{ZrO}_2$ を分散した場合には、領域Bの熱伝導度は減少するが、この領域の体積割合は小さいため、ペレット全体の熱伝導度への影響は少なく、スエリングと同様に熱伝導度への照射損傷も軽減される。

大きな径をもつ核分裂性物質を含む粒子を分散させることを上に提案したが、これの有効性を文献に現れている事例[6]を用いて示す。濃縮 $\text{UO}_2$ 粒子を $\text{BeO}$ に、粗粒子( $>150 \mu\text{m}$ )並びに細粒子( $<10 \mu\text{m}$ )として分散させた2種類の $\text{BeO-UO}_2$ 板状焼結体 $12 \times 10^{20}$  fissions/ccまで照射された結果は以下のである。細粒子の場合には28%の厚み増加が認められ、この大きなスエリングには生成した $\text{Kr}$ の19.1%の放出が伴った。粗粒子の場合には厚み増加は6%であり、 $\text{Kr}$ の放出率は6.9%であった。両者の間の差異は分散している $\text{UO}_2$ 粒の径の大小によるものである。Fig. 7に粗粒子の場合の照射後の金属顕微鏡写真を示す。分散 $\text{UO}_2$ 相粒子は照射 $\text{UO}_2$ 固有の気孔を有し、その周りを非晶質化したと思える $\text{BeO}$ 領域がその外側の $\text{BeO}$ 相と明確に区別して観察される。細粒子の場合にはこの様なはっきりした $\text{BeO}$ 相の中での領域区分は認められない。また、X線回折の結果では、粗粒子の場合には $\text{BeO}$ の回折ピークは残っていたが、細粒子の場合には回折ピークは消失している。

粗粒子の場合のスエリングは決して小さいものでなく、同等の燃焼率の $\text{UO}_2$ と比較すれば大きな値となっている。これは $\text{BeO}$ の中性子による損傷はFig. 1, 2に示した様に、特に低い温度では大きいことに原因しているのであろう。実際、核分裂片損傷による領域Bの周りの $\text{BeO}$ 相には微小なクラックが発生している。

## 5. まとめ

岩石型燃料を構成する安定化 $\text{ZrO}_2$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 及び $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ の中性子と核分裂片損傷を概観し、燃料ペレットの照射によるスエリングと熱伝導度変化を検討した。

中性子の照射で $\text{Al}_2\text{O}_3$ は若干のスエリングと熱伝導度の減少を示すが、 $\text{ZrO}_2$ や $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ は優れた耐損傷性を示す。しかし、核分裂片に対しては $\text{Al}_2\text{O}_3$ は少なくとも照射温度が $400^\circ\text{C}$ 程度で非晶質化し、約30%にも及ぶスエリングを起こす。また、中性子に対しては強い $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ も非晶質化を伴った相当のスエリングが起こる可能性がある。この事は燃料ペレットの温度の低い部分の

と同程度の $\sim 2\text{W/m}\cdot\text{K}$ の熱伝導度を示すであろう。領域Aにおける安定化 $\text{ZrO}_2$ の熱伝導度の照射効果の報告はない。未照射安定化 $\text{ZrO}_2$ の熱伝導度は広い温度範囲ではほぼ一定の値( $\sim 2\text{W/m}\cdot\text{K}$ )を示す。フォノン平均速度を $6 \times 10^5 \text{ cm/s}$ と評価し、密度、比熱等の値を用いて、フォノン自由行程を計算される熱伝導度の値からは $3.0\text{A}$ が得られる。即ち、この熱伝導度は結晶のもちえる最小に近い値を示している事になる。これは固溶体である安定化 $\text{ZrO}_2$ の複雑な構造に由来していると考えられる。この様な、既に結晶としては最小に近い熱伝導度を持つ物質に中性子や核分裂片が照射された時、熱伝導度は照射前と比較して殆ど変化しないであろう。核分裂生成物原子の分散が自由行程を更に減少させる可能性があるが、核分裂によって生成する原子数は結晶全体の原子数と比較すると極めて小さいため、あまり大きなものならないであろう。

上の様な推論から、大きな径の安定化 $\text{ZrO}_2$ を分散した場合には、領域Bの熱伝導度は減少するが、この領域の体積割合は小さいため、ペレット全体の熱伝導度への影響は少なく、スエリングと同様に熱伝導度への照射損傷も軽減される。

大きな径をもつ核分裂性物質を含む粒子を分散させることを上に提案したが、これの有効性を文献に現れている事例[6]を用いて示す。濃縮 $\text{UO}_2$ 粒子を $\text{BeO}$ に、粗粒子( $>150 \mu\text{m}$ )並びに細粒子( $<10 \mu\text{m}$ )として分散させた2種類の $\text{BeO-UO}_2$ 板状焼結体 $12 \times 10^{20}$  fissions/ccまで照射された結果は以下のものである。細粒子の場合には28%の厚み増加が認められ、この大きなスエリングには生成した $\text{Kr}$ の19.1%の放出が伴った。粗粒子の場合には厚み増加は6%であり、 $\text{Kr}$ の放出率は6.9%であった。両者の間の差異は分散している $\text{UO}_2$ 粒の径の大小によるものである。Fig. 7に粗粒子の場合の照射後の金属顕微鏡写真を示す。分散 $\text{UO}_2$ 相粒子は照射 $\text{UO}_2$ 固有の気孔を有し、その周りを非晶質化したと思える $\text{BeO}$ 領域がその外側の $\text{BeO}$ 相と明確に区別して観察される。細粒子の場合にはこの様なはっきりした $\text{BeO}$ 相の中での領域区分は認められない。また、X線回折の結果では、粗粒子の場合には $\text{BeO}$ の回折ピークは残っていたが、細粒子の場合には回折ピークは消失している。

粗粒子の場合のスエリングは決して小さいものでなく、同等の燃焼率の $\text{UO}_2$ と比較すれば大きな値となっている。これは $\text{BeO}$ の中性子による損傷はFig. 1, 2に示した様に、特に低い温度では大きいことに原因しているのであろう。実際、核分裂片損傷による領域Bの周りの $\text{BeO}$ 相には微小なクラックが発生している。

## 5. まとめ

岩石型燃料を構成する安定化 $\text{ZrO}_2$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 及び $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ の中性子と核分裂片損傷を概観し、燃料ペレットの照射によるスエリングと熱伝導度変化を検討した。

中性子の照射で $\text{Al}_2\text{O}_3$ は若干のスエリングと熱伝導度の減少を示すが、 $\text{ZrO}_2$ や $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ は優れた耐損傷性を示す。しかし、核分裂片に対しては $\text{Al}_2\text{O}_3$ は少なくとも照射温度が $400^\circ\text{C}$ 程度で非晶質化し、約30%にも及ぶスエリングを起こす。また、中性子に対しては強い $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ も非晶質化を伴った相当のスエリングが起こる可能性がある。この事は燃料ペレットの温度の低い部分の



$\text{Al}_2\text{O}_3$ 及び $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ は大きな体積増加を起こし、熱伝導度も著しく減少するであろう。他方、安定化 $\text{ZrO}_2$ は核分裂片に対しても優れた構造的安定性を示し、スエリングも小さい。

岩石型燃料がこのような照射損傷の、特に核分裂片損傷の、影響を極力受けない様にするためには、核分裂生成物であるプルトニウムを含む安定化 $\text{ZrO}_2$ は大きな粒子として、マトリックスである $\text{Al}_2\text{O}_3$ や $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ 中に分散させることが効果的である。こうすることにより核分裂片による損傷領域は安定化 $\text{ZrO}_2$ 相粒子内とこの粒子を取り囲む $10\mu\text{m}$ 程度の層内の $\text{Al}_2\text{O}_3$ 及び $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ に限定され、その他の $\text{Al}_2\text{O}_3$ 及び $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ は中性子だけの損傷を受けることになる。安定化 $\text{ZrO}_2$ は核分裂片に対しても耐損傷性があるので、原子炉内での照射により体積膨張や熱伝導度に影響があるのは安定化 $\text{ZrO}_2$ 粒子取り囲むマトリックス層だけに限定される。この領域の体積割合は小さいためにペレット全体のスエリングや熱伝導度への寄与は小さく、岩石型燃料ペレットの健全性は照射によっても損なわれないであろう。

#### 参考文献

- [1] H. Akie, T. Muromura, H. Takano and S. Matsuura, Nucl. Technol., V107 (1994) 182.
- [2] 高野秀機、室村忠純, 原子力工業, 42 (1996) 400.
- [3] 福谷耕司, 寺沢倫孝, 小沢国夫, 日本原子力学会誌, 30 (1988) 657.
- [4] F. W. Clinard, Jr. and D. M. Parkin, USDOC Report No. CONF-811237 (1981).
- [5] B. Lustman "Irradiation Effects in Uranium Dioxide", in "Uranium Dioxide: Property and Nuclear Application" edited by J. Bell, US Government Printing Office, Washington (1961), pp 431-666.
- [6] R. M. Berman, M. L. Bleiberg and W. Yeniscavich, J. Nucl. Mater. 2 (1960) 129.
- [7] W. Yanniscavin and B. L. Bleibelg, WAPD-BT-20, (1960) pp1-22.
- [8] J. H. Crawford and M. C. Wittels "Radiation Stability of Nonmetals and Ceramics" in "Proceedings of 2nd United Nations International Conference on Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva 1958" Vol 5, pp 300-310, United Nations, Geneva, 1958.
- [9] M. C. Wittels and F. A. Sherril, J. Appl. Phys., 28 (1957) 606.
- [10] Hj. Matzke, private communication.
- [11] Hj. Matzke, Catania for Nucl. Instrum. Method in Phys. Research B (1996) in press.
- [12] H. M. Nguib and R. Kelly, Rad. Effects, 25 (1975) 1.
- [13] H. M. Nguib and R. Kelly, J. Nucl. Mat., 35 (1970) 293.
- [14] Hj. Matzke and J. L. Whitton, Can. J. Phys., 44 (1966) 995.
- [15] C. Jech and K. Kelly, J. Phys. Chem. Sol., 30(1969) 465.
- [16] L. de Brouckere, J. Inst. Metals, 71 (1945) 131.
- [17] R. R. Asamoto, F. Anselin and A. E. Cont, GSPD-5493 (1968).
- [18] D. W. White, A. P. Beard and A. H. Wills, TID-7546 (1958) 717.

$\text{Al}_2\text{O}_3$ 及び $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ は大きな体積増加を起こし、熱伝導度も著しく減少するであろう。他方、安定化 $\text{ZrO}_2$ は核分裂片に対しても優れた構造的安定性を示し、スエリングも小さい。

岩石型燃料がこのような照射損傷の、特に核分裂片損傷の、影響を極力受けない様にするためには、核分裂生成物であるプルトニウムを含む安定化 $\text{ZrO}_2$ は大きな粒子として、マトリックスである $\text{Al}_2\text{O}_3$ や $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ 中に分散させることが効果的である。こうすることにより核分裂片による損傷領域は安定化 $\text{ZrO}_2$ 相粒子内とこの粒子を取り囲む $10\mu\text{m}$ 程度の層内の $\text{Al}_2\text{O}_3$ 及び $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ に限定され、その他の $\text{Al}_2\text{O}_3$ 及び $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ は中性子だけの損傷を受けることになる。安定化 $\text{ZrO}_2$ は核分裂片に対しても耐損傷性があるので、原子炉内での照射により体積膨張や熱伝導度に影響があるのは安定化 $\text{ZrO}_2$ 粒子取り囲むマトリックス層だけに限定される。この領域の体積割合は小さいためにペレット全体のスエリングや熱伝導度への寄与は小さく、岩石型燃料ペレットの健全性は照射によっても損なわれないであろう。

#### 参考文献

- [1] H. Akie, T. Muromura, H. Takano and S. Matsuura, Nucl. Technol., V107 (1994) 182.
- [2] 高野秀機、室村忠純, 原子力工業, 42 (1996) 400.
- [3] 福谷耕司, 寺沢倫孝, 小沢国夫, 日本原子力学会誌, 30 (1988) 657.
- [4] F. W. Clinard, Jr. and D. M. Parkin, USDOC Report No. CONF-811237 (1981).
- [5] B. Lustman "Irradiation Effects in Uranium Dioxide", in "Uranium Dioxide: Property and Nuclear Application" edited by J. Bell, US Government Printing Office, Washington (1961), pp 431-666.
- [6] R. M. Berman, M. L. Bleiberg and W. Yeniscavich, J. Nucl. Mater. 2 (1960) 129.
- [7] W. Yanniscavin and B. L. Bleibelg, WAPD-BT-20, (1960) pp1-22.
- [8] J. H. Crawford and M. C. Wittels "Radiation Stability of Nonmetals and Ceramics" in "Proceedings of 2nd United Nations International Conference on Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva 1958" Vol 5, pp 300-310, United Nations, Geneva, 1958.
- [9] M. C. Wittels and F. A. Sherril, J. Appl. Phys., 28 (1957) 606.
- [10] H. J. Matzke, private communication.
- [11] H. J. Matzke, Catania for Nucl. Instrum. Method in Phys. Research B (1996) in press.
- [12] H. M. Nguib and R. Kelly, Rad. Effects, 25 (1975) 1.
- [13] H. M. Nguib and R. Kelly, J. Nucl. Mat., 35 (1970) 293.
- [14] H. J. Matzke and J. L. Whitton, Can. J. Phys., 44 (1966) 995.
- [15] C. Jech and K. Kelly, J. Phys. Chem. Sol., 30(1969) 465.
- [16] L. de Brouckere, J. Inst. Metals, 71 (1945) 131.
- [17] R. R. Asamoto, F. Anselin and A. E. Cont, GSPD-5493 (1968).
- [18] D. W. White, A. P. Beard and A. H. Wills, TID-7546 (1958) 717.

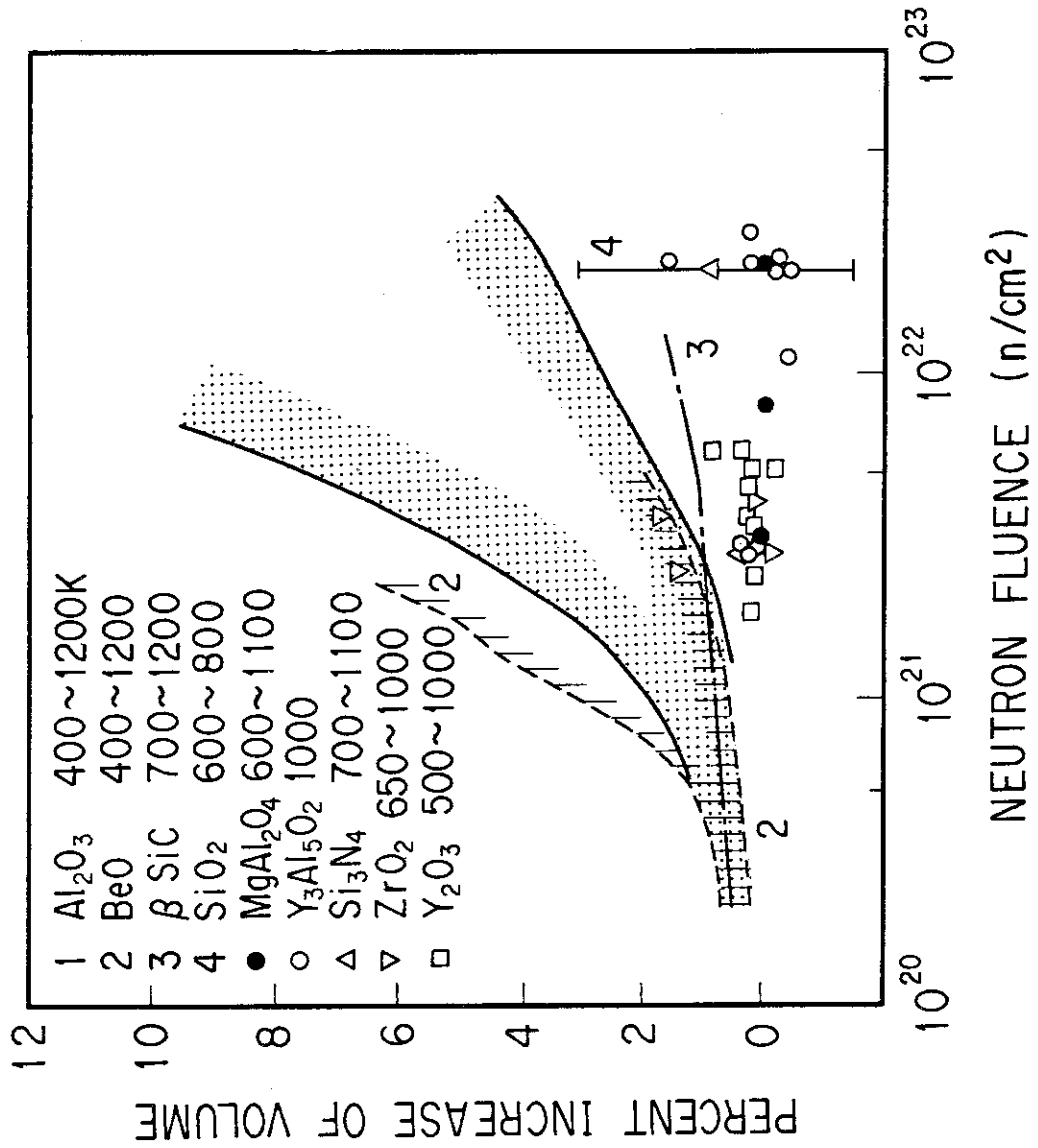


Fig. 1 Volumetric swelling as a function of neutron fluence for several ceramics [8].

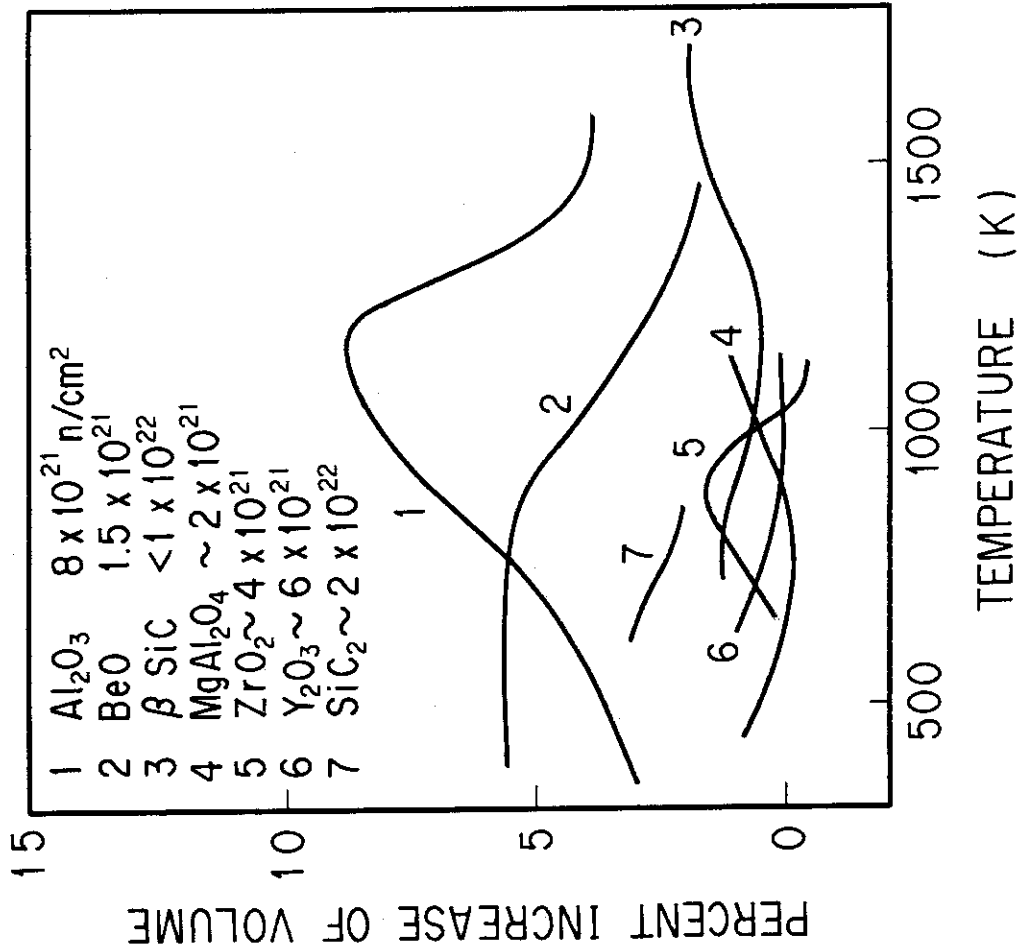


Fig. 2 Volumetric swelling by neutron as a function of irradiation temperature for several ceramics [8].

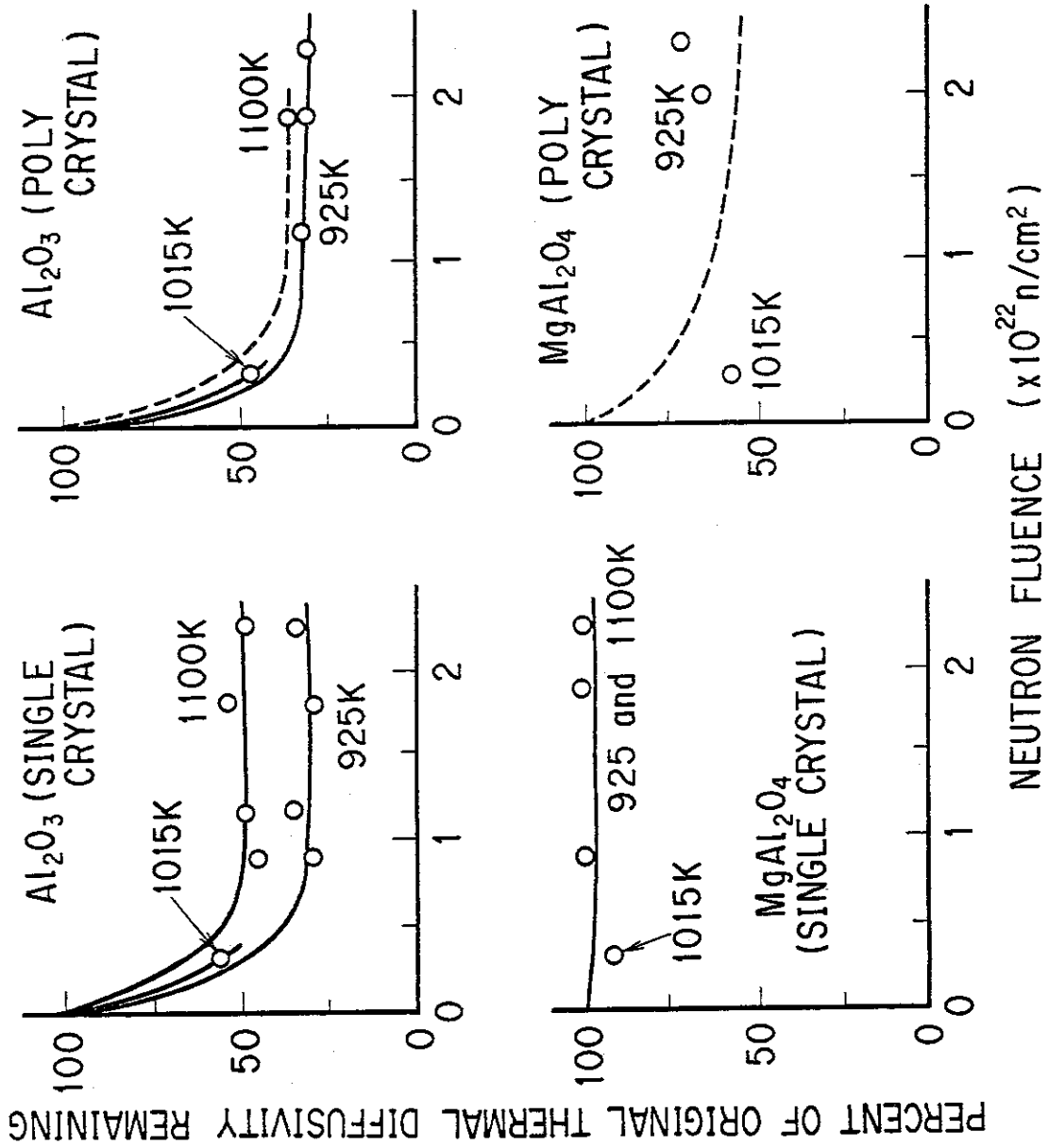


Fig. 3 Decrease in RT thermal diffusivity as a function of irradiation temperature and neutron fluence for single and polycrystal Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> [4].

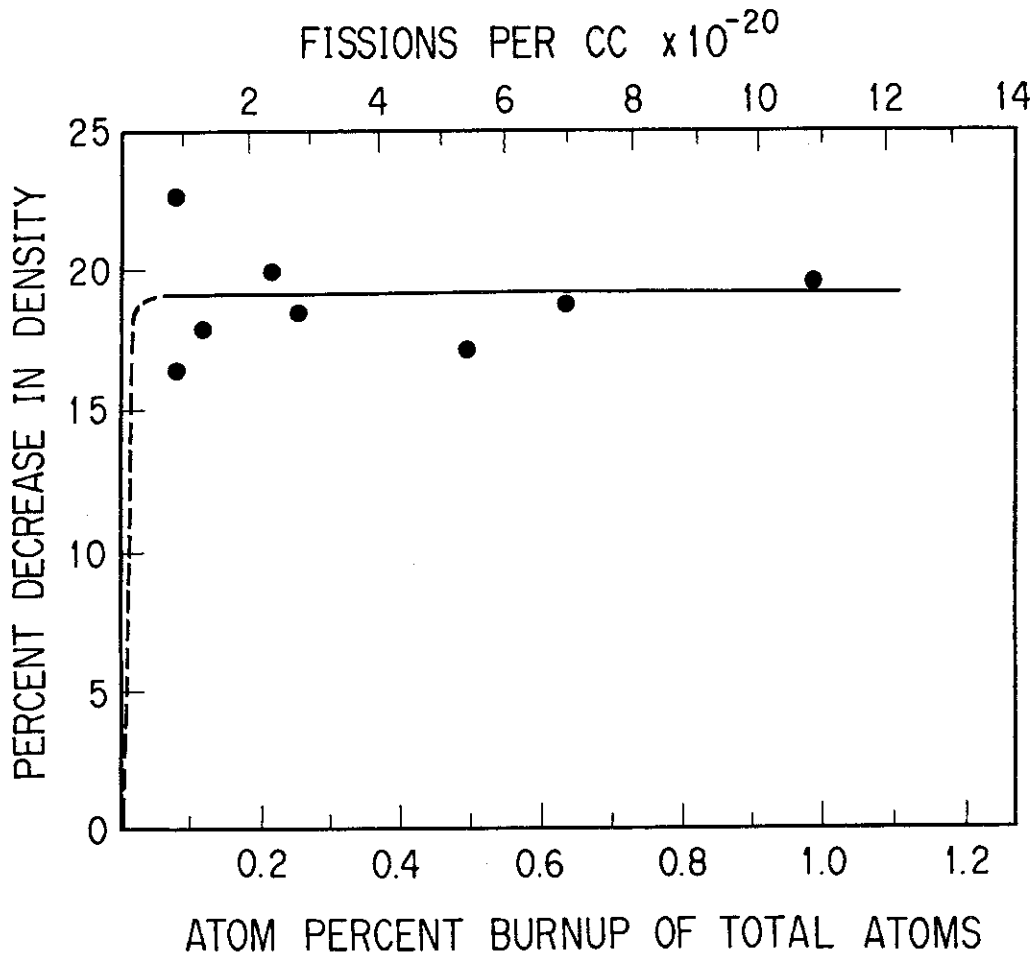


Fig. 4 Increase of volume of  $\text{Al}_2\text{O}_3 + 21 \text{ wt.}\% \text{UO}_2$  on irradiation [6].

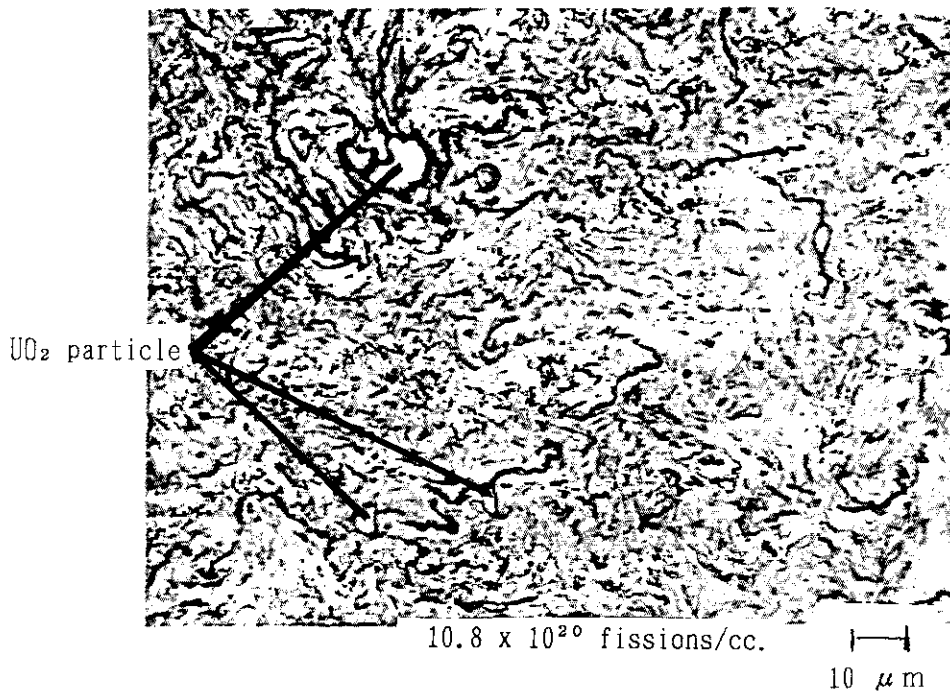


Fig. 5  $\text{Al}_2\text{O}_3 + 21 \text{ wt.}\% \text{UO}_2$  fuel structure after irradiation [6].

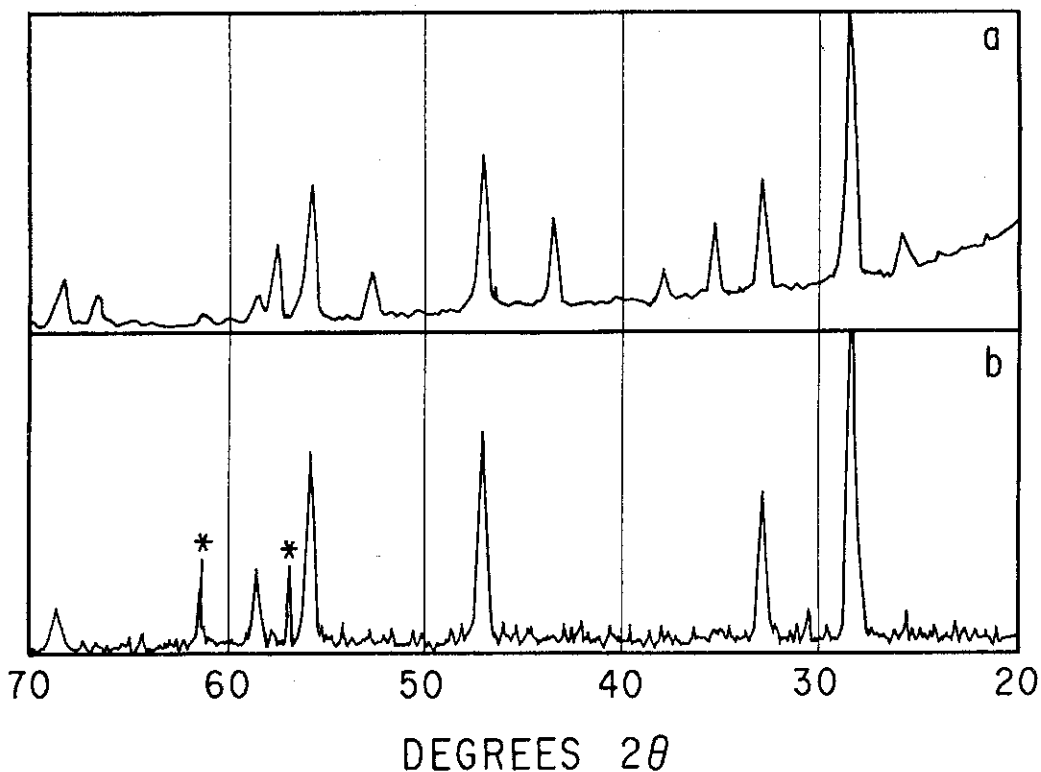


Fig. 6 X-ray diffraction patterns [6]. a)  $\text{Al}_2\text{O}_3 + 21 \text{ wt.}\% \text{UO}_2$ , unirradiated; b) after  $2 \times 10^{18}$  fissions/cc (\*-non-reproducible bursts of noise).

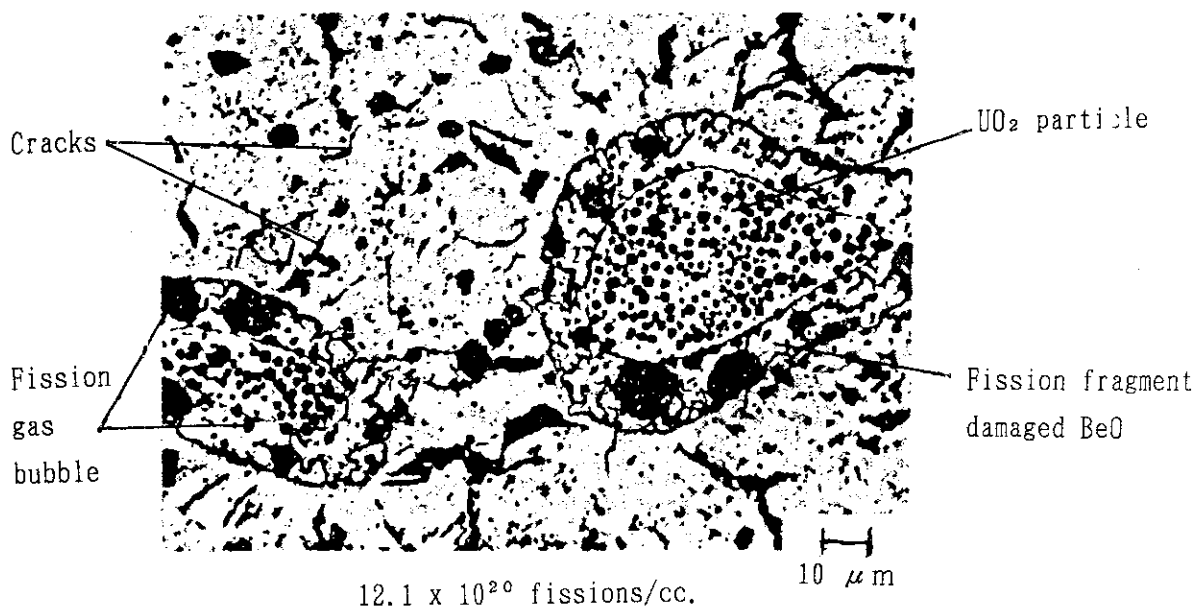


Fig. 7  $\text{BeO} + 20 \text{ wt.}\% \text{UO}_2$  fuel structure after irradiation [7].