

加速器による軽水炉燃料の高密度電子励起効果の解明

背景

原子力発電では発電費の低減および使用済燃料体数の削減のため、原子燃料(UO₂)の高燃焼度化を段階的に進めている。高燃焼度まで照射した燃料ペレット周辺部では、「リム組織」と呼ばれる結晶粒の細粒化(結晶粒径:~100nm)と粗大化気泡(気泡径:~1μm)の集積を特徴とする微細組織が形成される(図 1)。当所はリム組織形成による燃料物性の変化について明らかにしてきた^{*1}。しかし、高燃焼度化に対応した新型燃料の開発や照射挙動予測に不可欠なリム組織形成機構の理解には至っていない。形成機構の解明には照射欠陥に及ぼす燃料中の高エネルギー核分裂片(FP)による高密度電子励起効果の情報が必要であるが、今までの原子炉を用いた照射および照射後試験では、電子励起効果を分離・評価する事が不可能であった。

目的

照射温度を制御し、原子炉内の高エネルギー核分裂片照射環境を模擬出来る UO₂ へのイオン照射試験法を開発する。この試験法により照射した UO₂ 等の微細組織を透過型および走査型電子顕微鏡(TEM、SEM)により観察し、燃料の微細組織変化に及ぼす高密度電子励起効果を明らかにすることでリム組織の形成機構の解明を進める。

主な成果^{*2}

1. 軽水炉燃料環境を模擬したイオン照射試験法

燃料が軽水炉で経験する温度範囲(~1200℃)で制御ができ、非密封 UO₂ への照射が可能な専用チャンバーおよび照射リグを(独)日本原子力研究開発機構と共同で開発し(図 2)、タンデム加速器に設置した。UO₂ に高エネルギーFPと同等の 100-210MeV の照射エネルギーにて代表的FPであるXeイオンを高照射量まで照射する事ができ、日本で唯一の UO₂ への模擬イオン照射試験環境を整備した。

2. 高密度電子励起により発生する棒状欠陥(イオントラック^{*3})の特性

照射後試料を TEM にて観察し、形成されたイオントラック径のサイズ測定を行った。模擬物質である CeO₂ ではイオントラック径の2乗が電子的阻止能(S_e)^{*4} に比例し、計算で得られる S_e 値を用いて高エネルギーFPによるイオントラック径を推定出来る事が示された(図 3)。また、UO₂ に形成されるトラック径は CeO₂ の半分以下であり、UO₂ の高密度電子励起の感受性は CeO₂ よりも小さい事が解った。

3. 微細組織変化に及ぼすイオントラック重畳効果

210MeV の Xe イオンを 300℃の UO₂ に対して最大 1.5×10^{16} ions/cm²(1.4×10^{19} fissions/cm³ に対応)まで照射し、微細組織観察を行った(図 4)。照射表面の製造時ポアの変形と内部組織変化の観察から、イオントラックの重畳効果として、核分裂反応下ではマクロ的に欠陥が移動し難い低温(リム部温度:~500℃)でも照射欠陥は十分に離合集散する事、転位が移動する事、転位の蓄積により亜結晶が形成される事が明らかになった。

以上より、リム組織の特徴の一つである燃料細粒化現象が、転位が局所的に移動・蓄積し亜粒界が形成される過程(ポリゴニゼーション)により進行することが推定できた。

主 担 当 者 原子力技術研究所 発電基盤技術領域 主任研究員 園田 健

関 連 論 文 1) T. Sonoda et. al., Nucl. Instr. and Meth. B250(2006)254-258.

2) ibid, B266(2008)2882-2886.

*1: T.Sonoda et.al., Proc. of the 2007 International LWR Fuel Performance Meeting, Paper 1026, San Francisco, USA (2007).

*2: 本研究は原子力委員会の評価に基づき、文部科学省原子力試験研究費により実施されたものである。

*3: エネルギー粒子の高密度電子励起効果により結晶中に短時間・局所的な高温状態が発生した際に形成される棒状欠陥の総称。

*4: 物質内での電子励起(イオン化やプラズモン励起、等)による、荷電粒子の単位長さ当たりのエネルギー損失値。

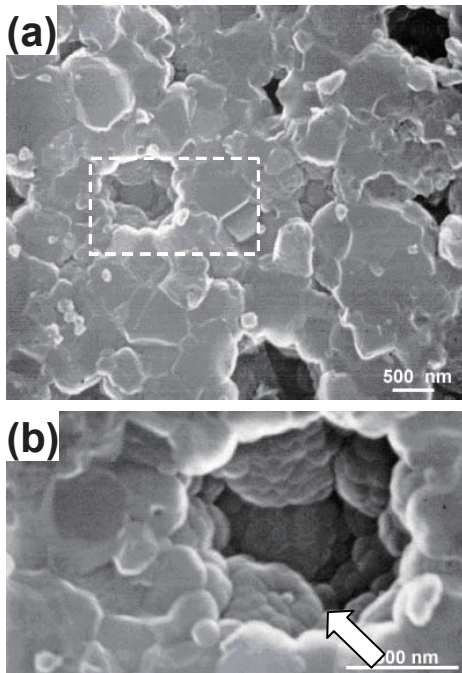


図1 (a)ハルデン試験炉で照射温度 1000°Cにて燃焼度 75 MWd/kgU まで燃焼した UO_2 の代表的な走査型電子顕微鏡像。(b) (a)の白枠部の拡大図。矢印部にリム組織の特徴である 100nm 程度の微細粒が観察される。(T. Sonoda et. al, Nucl. Instr. and Meth. B, 191 (2002) 622-628)

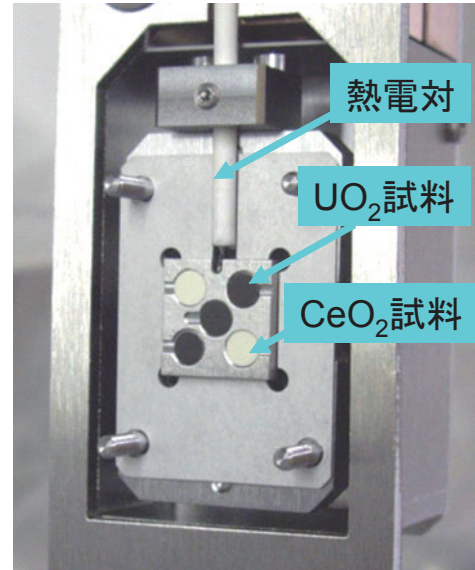


図2 UO_2 へのイオン照射用に開発した照射リグ内部に設置した高温照射用試料ホルダー。黒色サンプルが UO_2 3mmφディスク試料。

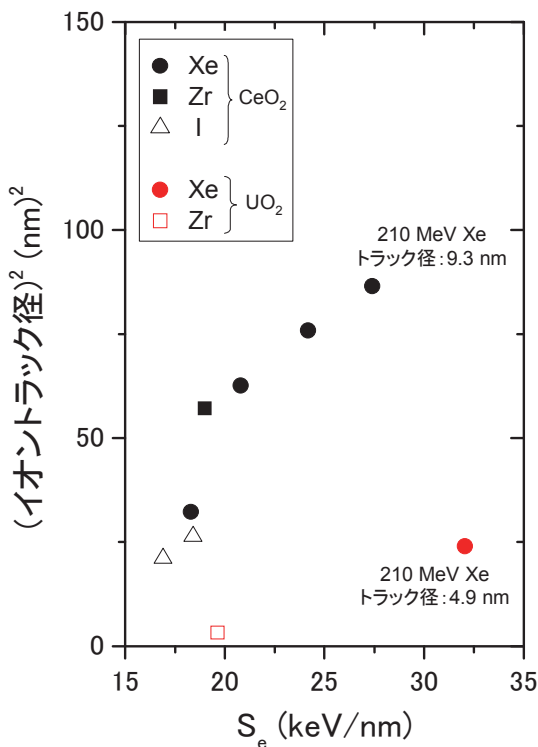


図3 室温照射にて UO_2 および CeO_2 中に形成されるイオントラック径の 2乗と電子的阻止能(S_e)の相関。210 MeV Xe イオン照射時に形成されるイオントラック径は UO_2 、 CeO_2 で各々 4.9nm, 9.3nm である。

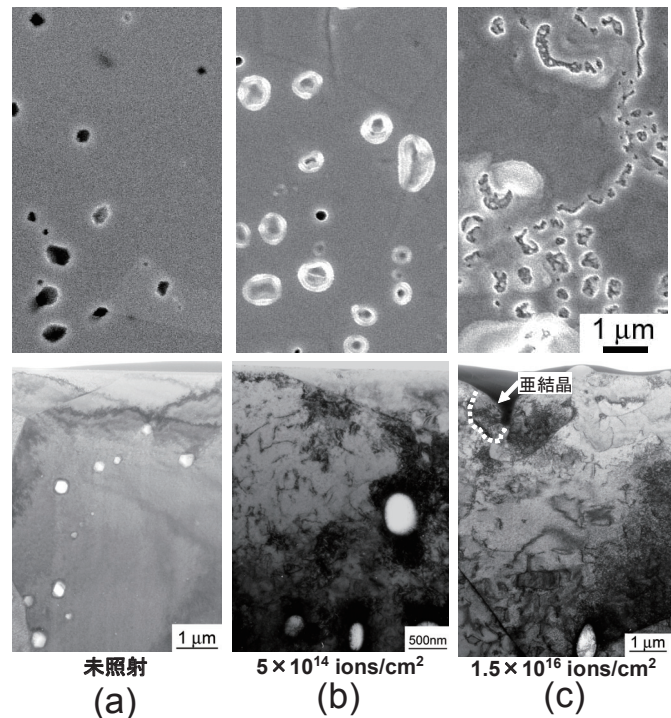


図4 UO_2 に 210MeV Xe イオンを照射温度 300°Cにて照射した場合の照射表面 SEM 像(上図)および断面 TEM 像(下図)。(b)下図から製造時ポアの楕円状変形と転位の形成が観察される。(c)下図中の白点線部は亜結晶の領域を示す。

1. 軽水炉発電

2. バックエンド

3. 放射線安全・
低線量放射線影響

4. 金属燃料・乾式
リサイクル技術

5. 新型炉

6. 施設保全(耐震)・
立地