

加速器を用いた燃料細粒化現象の機構解明

背景

原子力発電で使用される原子燃料(UO_2)の高燃焼度化を進めるため、高燃焼度時に発生する燃料細粒化現象(リム組織)の機構解明と、形成発達過程を再現する予測モデルの構築が求められている。この細粒化領域では、熱伝導の変化など物性が異なることが知られており、核分裂反応による照射損傷や核分裂生成物の蓄積、また高エネルギー核分裂片による局所的な電子励起効果などの重ね合わせにより発生すると考えられる。機構解明には各素過程の影響を分離して調べることが必要であるが、この各素過程の“分離観察と評価”には加速器による模擬照射試験が有効であるが、これを系統的に試みた例は無い。

目的

UO_2 の模擬物質として良く用いられている二酸化セリウム(CeO_2)結晶を対象に中・高エネルギーイオン照射を行い、微細組織の観察から CeO_2 の微細組織に及ぼす高密度電子励起の効果、照射欠陥蓄積過程とその照射温度依存性を明らかにする。

主な成果

1. 高密度電子励起効果による微細組織変化

種々の高エネルギー粒子による高密度電子励起により形成されるイオントラック^{*1}の詳細観察を行い、照射イオン種・照射エネルギーとイオントラック径についての関係を明らかにした(図1)。また、イオントラック径の2乗が電子的阻止能(S_e)^{*2}に比例する事が解り、電子的阻止能(S_e)により電子励起の影響範囲を評価出来ることが解った(図2)。またイオントラック形状は、400 nmまでの範囲では照射温度により大きく変化しなかった。

2. イオントラック重畳効果による微細組織変化

CeO_2 結晶は、イオントラック重畳後も結晶構造を保持した。これは電子励起効果により照射欠陥の回復が起こる可能性を示している。また高照射試料の表面ではイオントラック重畳と照射欠陥蓄積の相乗効果により軽水炉燃料と類似した凹凸状変形が観察された(図3)。

3. 照射欠陥による微細組織変化

低エネルギーのNiイオン照射により、試料全面に高密度に数nmサイズの微小バブル/ポイドが観察された(図4参照)。微小バブル/ポイドの形成理由としては酸素の優先的なはじき出しによるポイドの形成が考えられ、以上より CeO_2 では酸素がセリウムに較べても動き易い事が解った。

以上の結果から、影響因子パラメータを制御出来るイオン照射により細粒化モデルを構築する目処が得られた。なお、本研究は、日本原子力研究所(文部科学省)からの受託研究として実施した。

今後の展開

イオン照射後の CeO_2 について断面からの観察や照射温度依存性の調査を引き続き行い、最終的には、これら素過程の情報を踏まえて実際の燃料に近い系を加速器中で再現し、リム組織の再現を目指す。

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

関連報告書「核分裂環境下での蛍石型セラミックスの照射挙動解明」電力中央研究所報告:T03069(2004年4月)

*1 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。

*2 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。本研究では主にSRIM2000コードを用いて計算。

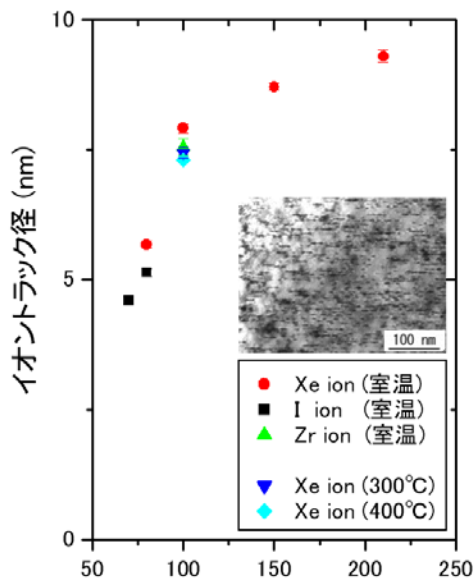


図1 CeO₂に形成されたイオントラック径の照射エネルギー依存性。図中に100 MeV Xeを照射した際に形成されたイオントラックの代表的な明視野像を示す。

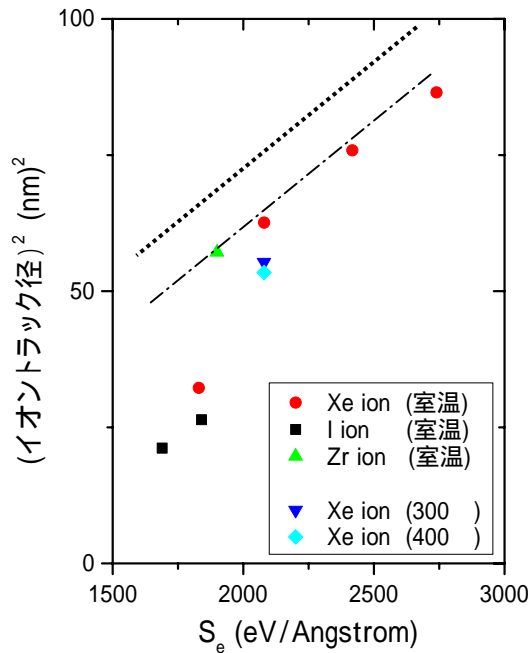


図2 CeO₂中に形成されるイオントラック径の2乗と電子の阻止能(S_e)の相関性。点線はSzenesモデルによる理論値 (G. Szenes, J. Nucl. Mater., 336(2005)81-89.)。

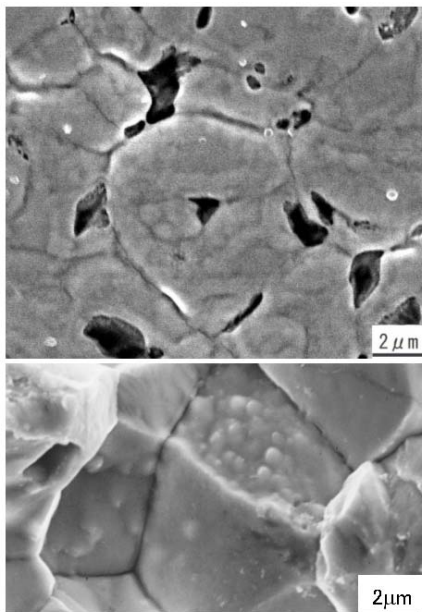


図3 CeO₂に210MeV Xeを 1×10^{15} /cm²まで照射した時の照射表面(上)と軽水炉(34MWd/kgU, 400 °C)の粒界表面(下)。

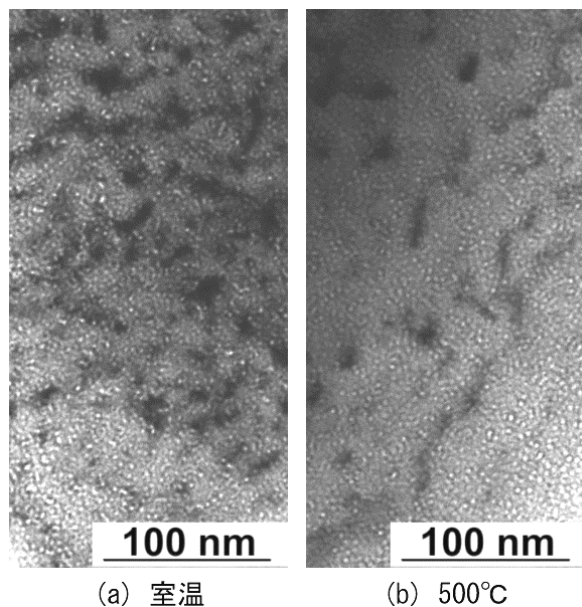


図4 照射量 1×10^{14} ions/cm²の4 MeV Niイオンを照射温度(a)室温、(b)500 °Cにて照射したときの代表的な明視野像。