

軽水炉燃料照射環境を模擬する加速器技術の開発と 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が可能なことから原子燃料(UO₂)の高燃焼度化を進めている。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(高燃焼度組織)」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。より一層の高燃焼度化を進めるための燃料開発にはこの燃料細粒化現象の機構解明と、形成発達過程を予測するモデルの構築が必要である。細粒化現象は核分裂反応にともなう照射効果(高密度電子励起効果、核分裂生成物蓄積、照射損傷蓄積、他)が重畳して発生すると考えられ、各照射効果を予測モデルに導入する必要がある。特に核分裂反応時の高エネルギー核分裂片(FP)により生じる高密度電子励起の効果と核分裂生成物蓄積はほとんど解明されていない。原子炉内の燃料で同時に発生するこれらの照射効果を分離・評価する手法として、加速器による模擬照射試験と照射後試料の電子顕微鏡による微細組織観察が挙げられるが、今まで系統的に調べられた例は無い。

目的

高燃焼度燃料照射環境を局所的に模擬するためにUO₂の模擬物質である二酸化セリウム(CeO₂)結晶に代表的な核分裂片であるXe, Zr, Iイオンの高エネルギーイオン照射およびXeイオン予注入^{*1}を行い、電子顕微鏡による微細組織観察から、高密度電子励起により発生するイオントラック^{*2}の特性やイオントラック重畳およびXe蓄積下での微細組織変化を明らかにする。

主な成果

1. 高密度電子励起により発生するイオントラックの特性

高エネルギー粒子により形成されるイオントラックの詳細観察(図1)から、イオントラック径の2乗が電子的阻止能(S_e)^{*3}に比例する事、即ち電子的阻止能(S_e)から電子励起の影響範囲を評価出来る事が解った(図2)。室温~800℃でのXeイオン照射試験からイオントラックは800℃でも存在する事、また断面TEM観察からイオントラック形成のしきい電子的阻止能(S_e)は15~16keV/nmである事が解った。以上より、高エネルギー核分裂片により形成されるイオントラックの特性が解明でき、高密度電子励起の影響範囲の測定手法を開発できた。

2. イオントラック重畳効果による微細組織変化とXeイオン蓄積効果

210MeV Xeイオン照射では照射量が 5×10^{14} ions/cm²から 1×10^{15} ions/cm²の間に照射表面全体で凹凸状変形が進展する事が明らかになった。この凹凸状変形の高倍率SEM像は高燃焼時に燃料の粗大化気泡内面で観察される球形の微細粒の状態と類似していた。内部組織の断面TEM観察より、凹凸状変形が発生した結晶内部では粒径0.1~1μm程度の微細粒が形成されている事を確認した(図3)。また、高燃焼時の燃料の内部状態を模擬して、CeO₂試料へ大量の核分裂生成物(Xe)を予注入した後、高エネルギーXeイオン照射を行う複合照射試験を実施した結果、Xeの予注入により凹凸状の表面変化が加速された(図4)。Xe予注入のみの試料表面で大きな組織変化は発生しなかったことから、凹凸状変形や微細粒形成にはイオントラックの重畳が不可欠である事が解った。

3. 軽水炉燃料環境を模擬したイオン照射試験法の確立

1.2より軽水炉燃料中で発生する照射効果を分離して再現し、評価できる手法を確立できた。これによりUO₂を用いた模擬照射試験を行い、燃料細粒化現象の機構解明と再現を進めることが可能になった。

今後の展開

UO₂試料への加速器イオン照射試験を開始し、軽水炉燃料中での照射効果と燃料細粒化現象の機構を解明し、細粒化現象の加速器中で再現する。

なお、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。

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 T. Sonoda et. al., Nucl. Instr. and Meth. B250 (2006) 254-258

*1 :大量のガスイオンを結晶中に導入する方法。主に低加速エネルギーの小型加速器(イオンインプランター)を用いて行なう。

*2 :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。

*3 :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。

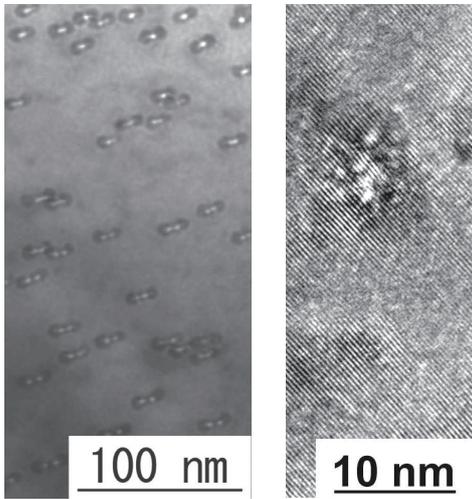


図1 CeO₂に100MeV Xe イオンを照射量：
1x10¹¹ ions / cm²、照射温度：室温で照射
した場合のTEM像
(a)明視野像、(b)イオントラック部の高分解能像。

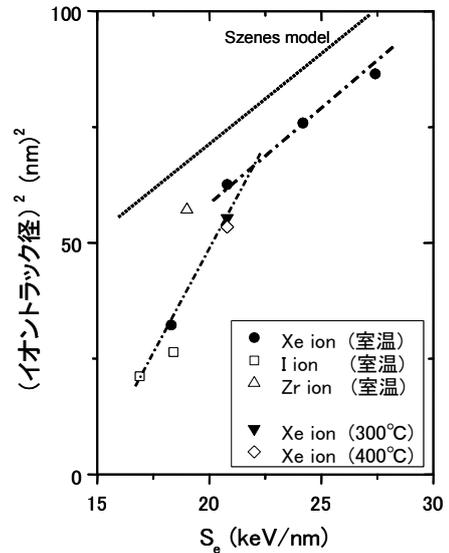


図2 CeO₂中に形成されるイオントラック径の2乗と電子的阻止能(S_e)の相関

点線は Szene's モデルによる理論値 (G. Szene's, J. Nucl. Mater., 336 (2005) 81-89.)。

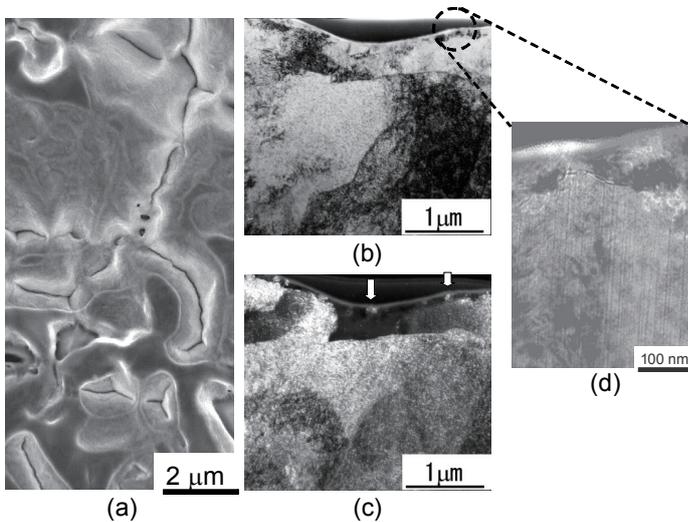


図3 210 MeV Xe イオンを CeO₂ 試料に 300°Cにて 2 × 10¹⁵ ions/cm² まで照射した時の SEM/TEM 像

(a) 照射表面の高分解能 SEM 像、(b)照射表面近傍の断面 TEM 像 (明視野像)、(c)(b)と同一視野の断面 TEM 像(暗視野像)、(d)(b)の表面近傍の高分解能断面 TEM 像。

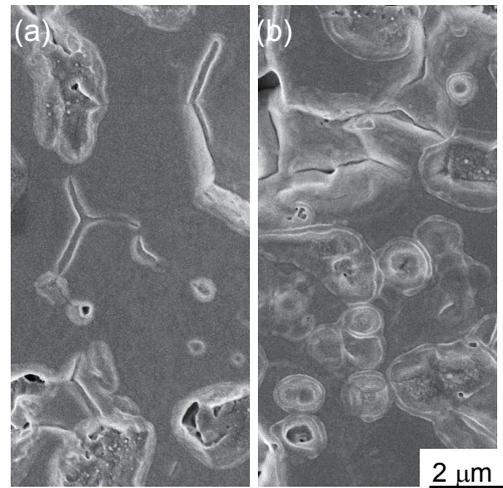


図4 CeO₂ 試料に 210MeV Xe 単独照射および 240keV Xe と 210MeV Xe の複合照射を行った際の試料表面の SEM 像

(a) 210MeV Xe (照射温度 300°C、照射量 5 × 10¹⁴ ions/cm²)、
(b) 240keV Xe (照射温度 室温、照射量 2 × 10¹⁶ ions/cm²) +
210MeV Xe (照射温度 300°C、照射量 5 × 10¹⁴ ions/cm²)。