7-4 ヘリウム蓄積・放出による燃料ミクロ組織の変化 -結晶格子とペレットの膨張・焼鈍相関を明らかに-



図7-11 室温での格子定数とペレット寸法変化の比較 横軸は、初期金属原子のうちα崩壊した原子の割合を意味し、 約0.03%α崩壊した時点で膨張が飽和した後は、He蓄積量が 増えても膨張しません。伸び率の最大誤差を誤差棒で示し ました。



図 7-12 焼鈍による格子定数とペレット寸法回復挙動の比較 各焼鈍温度での回復を、未損傷時に対する伸び率で表しています。 約800 ℃ 以上から結晶粒内Heの粒界への拡散・気泡形成が進行 し、1160 ℃ 加熱後には体積で0.5%に相当する膨張が観察され ました。



図 7-13 1160 ℃焼鈍後の(Pu, Cm) O₂ペレット 破面組織観察像(二次電子像)

結晶粒界に沿って100~200 nmの気泡痕が密に存在し、 粒内のHe原子が拡散により粒界に集まり、気泡を 形成したことが分かります(a)。気泡が一部連結し、 He放出経路を形成しています(b)。粒内破面には 気泡痕は見られません。

核燃料中に生成するNp,Am,Cm等のMAを再処理で 回収し、再び燃料に添加して燃焼させることが国内外で 検討されています。原子力機構では、UとPuからなる高 速炉用混合酸化物(MOX)燃料にMAを添加したMA-MOX燃料の基盤研究を進めています。

MA-MOX燃料には²³⁸Pu,²⁴¹Am,²⁴⁴Cm等の比較的半減 期の短いα崩壊核種が含まれるため、燃料製造後の保管 中に、自己照射損傷による格子欠陥とHe原子の蓄積が急 速に進みます。自己照射損傷による結晶格子の膨張は既 知の現象ですが、焼結体である燃料ペレットの寸法変化 についてはあまり知られていませんでした。また、原子 炉での燃焼時には、蓄積されたHeが高温で放出されると 予想され、その際の燃料組織への影響を調べておく必要 があります。

ここではMA-MOX燃料を単純化した系として、Cmを 5 mol%添加した(Pu, Cm) O2ペレットを調製し、以下 の試験を行いました。まず、室温での自己照射損傷によ る格子定数とペレット寸法変化の相関を調べ、図7-11 に示すように、ペレットは結晶格子とほぼ同期して膨張 し、伸び率0.3%強に飽和することを明らかにしました。

ペレット調製後、約0.3%の金属原子がα崩壊するま で(約700日)Heを蓄積させた後、焼鈍による寸法回復 挙動を調べた結果を図7-12に示します。格子定数が未 損傷時の値まで回復したのに対し、ペレット寸法はある 程度回復した後、1160 ℃での加熱で再び膨張しました。 焼鈍後のペレット破面組織を観察した結果、図7-13に 示すように、結晶粒界に沿って微細な気泡の痕が密に分 布していることが分かりました。このようなミクロ組織 変化は、燃焼が進んだ際の核分裂生成ガス放出によるも のと非常に良く似ており、MAを添加した燃料では、He 拡散・放出による粒界気泡生成とスエリングが燃焼のご く初期に起こり得ることを明らかにしました。今後更に 拡散係数や放出による焼結時の影響等、Heに関連した データを取得し、燃料挙動評価に役立てていく予定です。

本研究は、文部科学省からの受託研究「MAリサイクル のための燃料挙動評価に関する共通基盤技術開発」の成 果の一部です。

●参考文献

Takano, M. et al., Annealing Behavior of (Pu,Cm)O₂ Lattice and Bulk Expansion from Self-Irradiation Damage, Journal of Nuclear Materials, vol.414, issue 2, 2011, p.174-178.