

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 6 月 12 日現在

機関番号： 82110  
 研究種目： 基盤研究(B)  
 研究期間： 2009 ～ 2011  
 課題番号： 21360474  
 研究課題名（和文） 高エネルギー核分裂片照射場でのウラン酸化物の損傷形成モデルの検証  
 研究課題名（英文） Validation of radiation damage model for uranium dioxide irradiated with high-energy fission fragments  
 研究代表者  
 石川 法人（ISHIKAWA NORITO）  
 独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力基礎工学研究部門・研究主幹  
 研究者番号： 90354828

研究成果の概要（和文）：高エネルギー核分裂片発生に伴う $UO_2$ 中の照射損傷プロセスについて、既存の損傷形成モデルが妥当かどうかを実験的に検証した。具体的には加速器を利用したイオンビーム照射実験基盤の整備、 $UO_2$ 中の基礎的照射損傷データの取得、高エネルギー領域での損傷予測法の構築、高燃焼度領域で問題となるリム組織形成メカニズムの検証を行った。既存の損傷モデルの適用限界を示し、モデルの修正に考慮すべきプロセスを提示した。本研究で得られた成果を、査読付き論文、国際会議発表等を通じて公表した。

研究成果の概要（英文）：The preexisting models for describing the process of radiation damage due to high-energy fission fragments in  $UO_2$  is reexamined by experimentally simulating the radiation damage process by means of a high-energy ion accelerator. The experimental basis for the simulation is constructed, fundamental radiation damage data are obtained for ion-irradiated  $UO_2$ , method for the prediction of radiation damage especially in high-energy regime is proposed, and the formation mechanism for rim-structure formed in high burn-up fuels is examined. The limitation of preexisting models is clarified, and the process which should be taken into account for the modification of the models is proposed.

## 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	8,000,000	2,400,000	10,400,000
2010年度	3,400,000	1,020,000	4,420,000
2011年度	3,400,000	1,020,000	4,420,000
総計	14,800,000	4,440,000	19,240,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学、原子力学

キーワード：加速器、原子力エネルギー、格子欠陥、セラミックス、放射線

## 1. 研究開始当初の背景

軽水炉燃料ペレット内で高エネルギー核分裂片は顕著な損傷形成に寄与する。しかしながら、炉内の複雑な照射場における損傷形成メカニズムを推察するには不確定な要素が多い。したがってイオンエネルギー及びイオン種が制御可能な照射場を加速器ビームラインに構築し、 $UO_2$ について照射パラメータと損傷形成挙動との相関関係を定量的に解

析することが必要である。イオン・固体相互作用が中心課題となる放射線物理の観点からも、 $UO_2$ を含めたセラミックス中の照射損傷メカニズムの解明は重要である。本研究で取り組んだ課題を述べる。

(1) 高エネルギー粒子通過に伴うイオントラック形成メカニズム

100MeV 以上の高エネルギー重イオンは、酸化物中を通過する際に円筒状の欠陥集合

体(イオントラック)を形成することがある。その典型的な寸法はナノメートル程度である。研究代表者らは、 $\text{UO}_2$ と同じ結晶構造をもつ  $\text{CeO}_2$ において、イオントラック寸法予測モデル(電子系へ伝達されたエネルギーが熱エネルギーに変換されるプロセスを定式化した Thermal spike model)の妥当性を検証する。 $\text{UO}_2$ での高エネルギー核分裂片通過に伴うイオントラックの寸法を予測するモデルを検証することは、核燃料中の損傷予測の観点から必要である。

#### (2) 高損傷領域でのリム組織形成メカニズム

高い局所燃焼度(55GWd/tM以上)の $\text{UO}_2$ 燃料においてリム組織と呼ばれる微細構造が形成され、熱伝導度劣化などの燃料特性劣化を引き起こす。リム組織の主な特徴は、submicron オーダーの微細粒が形成されることである。研究代表者らは、平成16~20年度の期間、原子力基盤クロスオーバー研究のもとで、主に $\text{CeO}_2$ セラミックス中での微細組織形成モデルの妥当性を証明してきた。本研究により実際に $\text{UO}_2$ にイオン照射して基礎的な照射損傷データを蓄積すればリム組織形成メカニズムをより精密に明らかにできる段階に来ている。

### 2. 研究の目的

定義可能な照射場を加速器ビームライン上で構築し、照射パラメータと損傷挙動を関係付けることを本課題の柱とする。実際に $\text{UO}_2$ を照射ターゲットとして採用することにより、炉内環境の燃料損傷挙動を理解する実用的な損傷データを提供する。以下の目標を設定する。

- (1)  $\text{UO}_2$ 中の高エネルギー照射場でのイオントラック損傷に関する基礎データの取得
- (2)  $\text{UO}_2$ 中の高エネルギー照射場でのイオントラック損傷予測法の開発
- (3) 高照射量領域で適用可能な損傷形成モデルの構築

### 3. 研究の方法

#### (1) $\text{UO}_2$ 中の高エネルギー照射場でのイオントラック損傷予測法の開発

100MeV~310 MeVの重イオン(Zr, Xe, Au)を利用することによって、イオントラック損傷の電子的阻止能依存性を解析することができる。電子的阻止能とは、入射イオンが、固体内の電子系に伝達するエネルギー密度である。まず、天然 $\text{UO}_2$ を、電力中央研究所において、FIB(Focused Ion Beam)装置を用いて透過型電子顕微鏡観察用の微小加工試料に成形する。次に原子力機構タンデム加速器において高エネルギー重イオンを $\text{UO}_2$ に照射し、 $\text{UO}_2$ 中に形成された照射損傷を、走査型電子顕微鏡、透過型電子顕微鏡で観察評価する。

イオントラック寸法、微細構造等の損傷形態の電子的阻止能依存性を解析する。解析に必要な電子的阻止能の値を、計算コード(SRIM-code)によって見積もる。 $\text{UO}_2$ 以外の多くの酸化物において実績のある既存の損傷予測モデルが、 $\text{UO}_2$ においても適用可能かどうかを検証する。

#### (2) 高照射量領域において適用可能な損傷形成モデルの検証

高照射量領域での $\text{UO}_2$ の高損傷状態を再現するために、(タンデム加速器で通常利用する負イオン源を利用せず、)高電圧側に設置している supernanogan(既設)から発生する高電流多価ビームを利用して効率的に照射実験を行う。高照射量領域での損傷形態を評価するために電子顕微鏡で照射試料を観察する。特に、照射によって形成される高密度の転位組織が、照射量の増加に伴って、どのように微細構造形成に至るか、という観点から調べるため、微細組織の照射量依存性を詳細に解析する。放射光を利用した XAFS(X線吸収微細構造)法を用いた損傷評価を試みる。さらに、X線回折測定からもイオン照射に伴う格子定数変化を定量的に評価する。実際の軽水炉燃料においても、燃焼度増加に伴う格子定数変化が照射損傷増大の重要な指標である。

### 4. 研究成果

#### (1) 電子的阻止能とイオントラック損傷の関係

$\text{UO}_2$ 焼結体試料に対して電子的阻止能の異なる高エネルギーイオン(例:100 MeV Zr、210 MeV Xe、310 MeV Au)照射を行い、透過型電子顕微鏡を用いて、入射イオン一つがつくるイオントラック損傷の直径を見積もった。電子的阻止能が20-42 keV/nmの範囲で、約1.8-5.0 nmの寸法レベルのイオントラックが観測された(観察例:図1)。イオントラックの寸法は、電子的阻止能に対して単調増加の傾向が見られた。

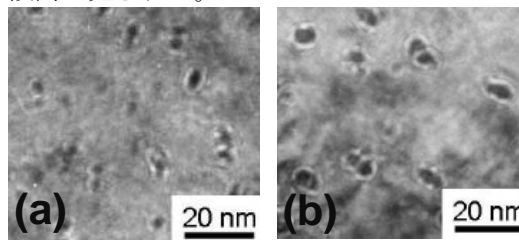


図1 (a)210 MeV Xe照射した $\text{UO}_2$ のイオントラックと(b)電子的阻止能の異なる310 MeV Au照射した $\text{UO}_2$ のイオントラック

(2)Thermal spike modelの妥当性検証  
Szenesが提唱しているThermal spike modelとToulemondeが提唱している同様のmodel

は、ほぼ同じイオントラック予測値を与える。また、どちらの model も、イオントラック内部が非晶質化するターゲット物質群においては、よく実験データを再現することで知られている。一方、本研究で取り扱う  $UO_2$  は、イオントラック内部が非晶質化せず、異なるイオントラック形成メカニズムが想定すべきかどうかは懸案となっていた。結果的に、本研究で得られたイオントラックデータは、定性的には既存の Thermal spike model と矛盾しないが、定量的には不一致が見られた。本実験によって、イオントラックの寸法予測を実験データに基づいて適切に予測することが可能になった。しかしながら、model による予測との不一致の原因として、例えば、局所的に融解したイオントラックが再結晶化するプロセスが想定され、その仮説の正当性を今後確かめることが課題として残った。

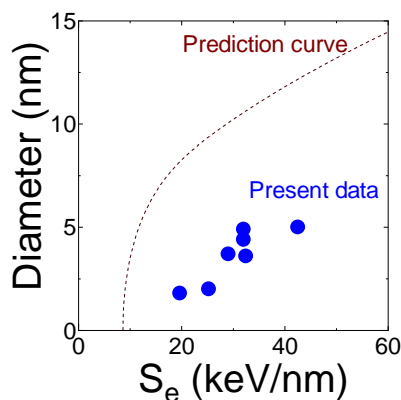


図 2 イオントラック直径の電子的阻止能 ( $S_e$ ) 依存性 (実験データと Thermal spike model に基づいた予測曲線との不一致)

### (2) イオントラック占有率と損傷の関係

高照射量になるに従って、ターゲット固体中でのイオントラックの重畳の度合いが増加する。したがって、高照射量領域では、イオントラックの占有度および重畳度を考慮に入れて、損傷蓄積挙動を検討する必要がある。占有率および重畳度の照射量依存性を記述する関数として二項分布関数を採用し、その関数系に基づいて高照射量まで高エネルギーイオン照射した酸化物中の結晶構造の乱れに関する照射損傷データを解析した。その結果、提案した関数系によって照射損傷データをほぼ再現することができた。高精度で照射損傷予測することは重要であり、その際にイオントラックの占有度および重畳度に基づいた予測手法が有効であることを示すことができた。

### (3) 重畳効果と損傷組織の関係

$UO_2$  焼結体試料に対して典型的な核分裂生成物である Xe イオンを、熱損傷なしに  $10^{16}$  ions/cm<sup>2</sup> オーダーの高照射量領域まで照射し、

照射試料の透過型電子顕微鏡観察を行った。その結果、特に高照射量領域での微細組織形成プロセスについて以下のことを明らかにした。(a) 試料中にもともと存在する気孔が、照射方向に伸長する特殊な変形を起こす。(b)  $5 \times 10^{14}$  ions/cm<sup>2</sup> 以上の照射量領域で、すでに転位網が形成されることを明らかにした (図 3)。(c)  $1.5 \times 10^{16}$  ions/cm<sup>2</sup> の高照射量領域では、重畳照射に伴う転位の非熱的移動を示唆する亜粒界組織が観測された。軽水炉燃料に見られる高燃焼度組織の主要な特徴である細粒化現象に関連して、転位網の再配置が結晶粒分割に至るいわゆる「結晶粒分割プロセス」モデルが、高照射量での微細観察データを合理的に説明できることを明らかにした。

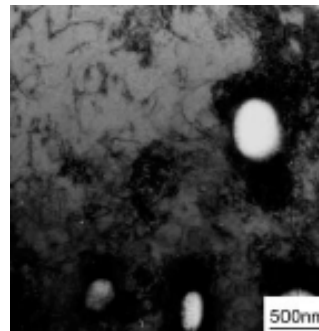


図 3 210 MeV Xe を  $5 \times 10^{14}$  ions/cm<sup>2</sup> の照射量まで照射した  $UO_2$  の電子顕微鏡写真

本研究の意義、重要性は、以下の通りである。高精度で酸化物燃料の照射損傷を予測することは重要である。本成果により、高照射量での微細組織形成プロセスを記述するために必要な要素 (イオントラック損傷、転位網、気泡密度、亜粒界の形成の有無など) に関する基礎データを取得することができた。適切な損傷予測モデルを構築するために必要な枠組みを特定できたことで、今後の照射損傷プロセスの解明研究をより効率的かつ合理的に進められることができるようになった。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 (計 7 件)

- ① N. Ishikawa, K. Ohhara, Y. Ohta, O. Michikami, Binomial distribution function for intuitive understanding of fluence dependence of non-amorphized ion-track area, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 査読有, 268 (2010) 3273-3276.  
DOI: 10.1016/j.nimb.2010.06.006
- ② T. Sonoda, M. Kinoshita, N. Ishikawa, M. Sataka, A. Iwase, K. Yasunaga, Clarification of high density

electronic excitation effects on the micro- structural evolution in  $UO_2$ , Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 査読有, 268 (2010) 3277-3281.

DOI: 10.1016/j.nimb.2010.06.015

- ③ N. Ishikawa, T. Sonoda, Y. Okamoto, T. Sawabe, K. Takegahara, S. Kosugi, A. Iwase, X-ray study of radiation damage in  $UO_2$  irradiated with high-energy heavy ions, Journal of Nuclear Materials, 査読有, 419 (2011) 392-396.  
DOI:10.1016/j.jnucmat.2011.08.013
- ④ N. Ishikawa, K. Takegahara, Radiation damages in  $CeO_2$  thin films irradiated with ions having the same nuclear stopping and different electronic stopping powers, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 査読有, 272 (2012) 227-230.  
DOI: 10.1016/j.nimb.2011.01.071
- ⑤ N. Ishikawa, K. Takegahara, Electrical conductivity change in  $CeO_2$  irradiated with high-energy heavy ions, JAEA-Review, 査読無, Vol. 2010-056, (2010)105-106.  
<http://jolissrch-inter.tokai-sc.jaea.go.jp/pdfdata/JAEA-Review-2010-056.pdf>
- ⑥ T. Sonoda, T. Sawabe, N. Ishikawa, M. Sataka, Ion charge dependence on diameter of ion tracks in  $UO_2$ , JAEA-Review, 査読無, Vol.2010-056, (2010) 101-102.  
<http://jolissrch-inter.tokai-sc.jaea.go.jp/pdfdata/JAEA-Review-2010-056.pdf>
- ⑦ N. Ishikawa, T. Sonoda, T. Sawabe, A. Iwase, Radiation damage of crystal structure in  $UO_2$  irradiated with high-energy heavy ions, JAEA-Review, 査読無, Vol.2011-040, (2011) 73-74.  
<http://jolissrch-inter.tokai-sc.jaea.go.jp/pdfdata/JAEA-Review-2011-040.pdf>

[学会発表] (計 8 件)

- ① T. Sonoda, Clarification of high density electronic excitation effects on the microstructural evolution in  $UO_2$ , REI-15 (15<sup>th</sup> International Conference on Radiation Effects in Insulators), 2009年9月3日, Padova, Italy

- ② N. Ishikawa, Binomial distribution function for intuitive understanding of fluence dependence of non-amorphized ion-track area, REI-15 (15<sup>th</sup> International Conference on Radiation Effects in Insulators), 2009年8月31日, Padova, Italy
- ③ N. Ishikawa, Study on radiation damage in  $UO_2$  by using high-energy heavy ions, NuMat 2010 (Nuclear Materials 2010), 2010年10月6日, Karlsruhe, Germany
- ④ T. Sonoda, Microstructural evolution in  $UO_2$  under accumulation of ion tracks by high energy fission products, NuMat 2010 (Nuclear Materials 2010), 2010年10月6日, Karlsruhe, Germany
- ⑤ 石川法人, 高エネルギー粒子線照射による電子励起と格子欠陥 (招待講演), 格子欠陥フォーラム, 2010年9月21日, 大阪府, 日本
- ⑥ N. Ishikawa, Irradiation Damage due to Electronic Excitation in  $CeO_2$  Irradiated with High-Energy Heavy Ions, IBMM 2010(International Conference on ion beam modification in Materials), 2010年8月22日, Montreal, Canada
- ⑦ N. Ishikawa, Ion-track formation in  $UO_2$  irradiated with High-Energy Heavy Ions, E-MRS(European Materials Research Society 欧州材料学会), 2011年5月11日, Nice, France
- ⑧ 石川法人, 高エネルギーイオン照射した  $UO_2$  におけるイオントラック形成, 日本物理学会, 2012年3月2日, 関西学院大学(大阪), 日本

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

石川 法人 (ISHIKAWA NORITO)  
独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力基礎工学研究部門・研究主幹  
研究者番号: 90354828

### (2) 研究分担者

なし

### (3) 連携研究者

園田 健 (SONODA TAKESHI)  
電力中央研究所・原子力技術研究所・主任研究員  
研究者番号: 20371346  
須貝 宏行 (SUGAI HIROYUKI)  
独立行政法人日本原子力研究開発機構・原

子力基礎工学研究部門・研究副主幹(H23 7  
月退職)  
研究者番号：80391291