

X線吸収微細構造測定 (EXAFS) による核燃料模擬物質 (CeO₂) 中の希ガス挙動の研究Study on the behavior of rare gases in CeO₂ by using EXAFS measurements岩瀬彰宏¹⁾西畑保雄²⁾

Akihiro IWASE

Yasuo NISHIHATA

¹⁾大阪府立大学 ²⁾原子力機構

要約 高燃焼度化した核燃料の挙動を模擬するために、模擬物質 CeO₂ 薄膜について、Xe-K、Ce-K 吸収端における EXAFS スペクトルの、イオン照射量依存性、測定温度依存性を評価した。解析の結果、Ce-Ce 結合状態のイオン照射による変化を捉えることができた。

キーワード：核燃料模擬物質、高燃焼度化、EXAFS測定、結晶構造微細変化、

1. 目的

原子力発電による電力生産をより効率的に行うため、UO₂ 核燃料を高燃焼度化させる計画が進んでいる。しかし、高燃焼度化により発生する高エネルギー核分裂生成物をもたらす格子欠陥生成や希ガス蓄積により、核燃料が微細粒化するなど変質が起こる。その発現メカニズムを追及するため、模擬物質 CeO₂ を用いて、Xe イオンを注入したり、加速器を用いた高エネルギー重イオン照射を行うことにより、CeO₂ の原子配列や Xe ガスの拡散・集合挙動を EXAFS 測定により調べるのが本研究の目的である。

2. 方法

UO₂ の模擬物質である CeO₂ 薄膜を、いろいろな照射量の 200MeV の Xe イオンや低エネルギー Xe イオンで照射し、SPring8-BL14B1 において 10K-300K の温度範囲で CeK、XeK 吸収端の EXAFS 測定を行った。得られたスペクトルから Xe 原子のクラスター形成や Ce-Ce 結合状態の高エネルギーイオン照射効果を調べた。

3. 研究成果

140KeV の Xe イオンを試料表面に打ち込み、Xe の K 吸収端で EXAFS を測定した結果、吸収端はクリアに観測されたが、EXAFS 振動は明確に観測されなかった。これは、Xe 原子が CeO₂ 結晶の色々な位置にいることを示唆しているため、この試料を 500 度 C で 30 分、900 度 C で 30 分アニールし、Xe 原子を集合させることによる EXAFS スペクトルの変化の測定を試みたが、スペクトルに明確な構造は現れなかった。つぎに 200MeV の Xe イオンで照射した CeO₂ 薄膜の CeK 吸収端近傍 EXAFS スペクトルを 10K-300K の温度範囲で測定した。今回は Ce-Ce 対におけるデバイワラー因子の重イオン照射量および測定温度依存性を解析し、デバイワラー因子における静的寄与と動的寄与を分離した。動的寄与を表すアインシュタイン振動数は低照射量で減少し、その後増加に転じた。また、温度に依存しない静的寄与は、高照射量において大きく増加した。これは、前回 Ce-O 対で得られた結果と類似するものである。

4. 結論・考察

少ない照射量において Ce-O、Ce-Ce のアインシュタイン振動数が減少したことは、結晶を構成する原子間の結合状態が弱くなったことを意味する。従って、重イオン照射による原子移動・結晶構造変化の前駆現象を捕らえたのではないかと考えられる。また、高照射量では、CeO₂ の結晶がひずむため、温度に関係なく、静的なデバイワラー因子の増加にいたったと考えられる。Xe 吸収端での EXAFS 振動がアニールによっても変化しなかったのは、Xe 打ち込み量の不足が主な原因であると考えられるので、今後、より Xe 原子濃度を高めた試料での測定が必要であることがわかった。

5. 引用(参照)文献等