

課題番号 :2023B-E10
利用課題名 (日本語) :放射光 XAFS 測定を用いた軽水炉燃料溶融現象における構造・電子状態解明
Program Title (English) :In-situ XAFS investigation for the light water reactor's fuel-cladding liquefaction
利用者名(日本語) :伊藤 あゆみ¹⁾ 小無 健司²⁾ 有田 裕二³⁾ 新納 圭亮³⁾ 生田 陸人³⁾
矢板 毅⁴⁾ 谷田 肇⁴⁾ 小林 徹⁴⁾ 小島 雅明⁴⁾ 福田 竜生⁴⁾
Username (English) :Ayumi ITOH, Kenji KONASHI, Yuji ARITA, Keisuke NIINO
Rikuto IKUTA, Tsuyoshi YAITA, Hajime TANIDA,
Tohru KOBAYASHI, Masaaki KOBATA, Tatsuo FUKUDA
所属名(日本語) :1)東京工業大学 2)東北大学 3)福井大学 4)日本原子力研究開発機構
キーワード:超高温 XAFS/XRD、その場観察、核燃料材料溶融、次世代原子炉の高温安全性評価、軽水炉過酷事故

1. 概要 (Summary) 目的・用途・実施内容

軽水炉過酷事故における炉心燃料の溶融機構を解明するために、模擬燃料物質として Y_2O_3 および Zr/Y_2O_3 混合物質を用いて「高温放射光 XAFS/XRD 法」の適用性を評価した。本課題では透過 X 線下流に二次元検出器を設置し、加熱チャンバにガス脱酸装置を接続し低酸素分圧における高温 XAFS/XRD 同時測定を試みた。 Y_2O_3 純物質については融点 (~2700 K) までの高温測定に成功し、回折画像から得た格子定数変化から温度校正を行う方法を確認した。また、 $Zr-Y_2O_3$ 混合物質については、金属原子の K 吸収端スペクトル (Zr-K, Y-K)、X 線回折像を室温から 2500 K 程度までの温度範囲において同時測定した。XRD と XAFS のスペクトル解析結果から、Zr がこれまでよりも高温まで金属状態を維持できていたことが確認できた。

2. 実験(目的,方法) (Experimental)

本研究が最終目的とする UO_2-Zr 溶融反応は Zr が完全酸化されない状況を想定しているため、酸素分圧を十分低く制御しながら高温 XAFS/XRD 測定ができるシステムに改良する必要がある。今期は Ti 脱酸装置を新たに開発し、BL22XU ビームラインに設置した加熱チャンバに接続し、高温実験中の酸素分圧を $10^{-15} \sim 10^{-20}$ atm を維持できるかを確認し、得られたスペクトルを文献情報と比較して妥当性を評価した。

3. 結果と考察 (Results and Discussion)

$Zr-Y_2O_3$ 混合物質を室温から 2500 K 程度まで昇温した。酸素分圧は十分低く $10^{-20} \sim 10^{-15}$ atm に制御できたが 2000

K 以上では $ZrO_2-Y_2O_3$ 反応を観察した。非調和振動からの寄与を考慮した EXAFS 振動解析では、 $M-O(M=Y, Zr)$ 結合で二次キュムラント係数は直線的に、三次キュムラント係数は放物線的な単調増加を示した。金属の非調和振動効果を説明するのにしばしば用いられるモースポテンシャルによる理論的な評価によると、二次キュムラント係数は温度に、三次キュムラント係数は温度の二乗に比例する、とされており、本研究の測定結果は傾向としては当該の理論予測に矛盾しないものであることを確認した。

4. その他・特記事項 (Others)

- Miyanaga, T. & Fujikawa, T. (1994). J Physical Soc Japan 63, 3683–3690.
- 本課題で得た結果に基づいて提案した研究課題が OECD/NEA TCOFF-2 プロジェクトの R&D 公募 (https://www.oecd-nea.org/jcms/pl_83589/tcoff-ii-call-for-r-d-proposals) で採択されました。