

課題番号 : 2024A-E12

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<sup>1)</sup> 小無 健司<sup>2)</sup> 有田 裕二<sup>3)</sup> 生田 陸人<sup>3)</sup> 山下 京也<sup>3)</sup> 矢板 毅<sup>4)</sup>  
谷田 肇<sup>4)</sup> 小林 徹<sup>4)</sup> 小島 雅明<sup>4)</sup> 福田 竜生<sup>4)</sup>

Username (English) : Ayumi ITOH, Kenji KONASHI, Yuji ARITA, Rikuto IKUTA, Kyoya YAMASHITA, 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  $\text{CeO}_2/\text{ZrO}_2$  混合物質と  $\text{ZrO}_2$ 、燃料物質  $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$  について「高温放射光 XAFS/XRD 法」を用いて高温反応過程の構造変化を評価した。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。 $\text{ZrO}_2$  純物質については融点近傍 2833 K、混合物質については約 2200 K までの高温測定に成功し、Zr 原子の K 吸収端および U 原子の L3 吸収端スペクトル、X 線回折像を同時測定した。本システムでウランを扱えることを確認するとともに、XRD と XAFS のスペクトル解析によって  $\text{CeO}_2\text{-ZrO}_2$  と  $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$  の反応機構が異なることがわかった。

## 2. 実験(目的,方法) (Experimental)

前期までに構築したシステムでウランを扱えるようにするために、試料を密閉した加熱チャンバをさらに密閉するグローブボックスが設置された。グローブボックスには X 線の透過を妨げないように窓が設置されており、測定データの品質に影響を与えないことを確認した。得られたデータの妥当性を評価するために、 $\text{ZrO}_2$  純物質を溶融まで測定し体積変化、相転移に伴う構造変化、などについて文献値と比較して妥当性を評価した。その後、ウラン試験については万が一の漏洩に備えて酸化物の少量組成について高温反応を測定し、比較として  $\text{CeO}_2\text{-ZrO}_2$  についても同様に測定を実施した。得られたスペクトルを解析し、格子

定数の温度変化、状態図との比較、局所構造解析などを行った。

## 3. 結果と考察 (Results and Discussion)

$\text{ZrO}_2$  純物質の XRD スペクトル解析から、単斜晶 $\leftrightarrow$ 正方晶 $\leftrightarrow$ 立方晶の相転移温度、および、格子定数から求めた体積変化は文献値とよく一致した。これにより、温度指示値やスペクトルの品質について妥当性を確認することができた。また、2500 K 以上では c 軸方向の異方性が緩和されて立方晶配置に近づく傾向を確認できた。混合物質測定では、 $\text{CeO}_2\text{-ZrO}_2$  では単斜晶  $\text{ZrO}_2$  の相転移と同時に  $\text{CeO}_2$  固溶反応が起こったのに対して、 $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$  では単斜晶  $\text{ZrO}_2$  が正方晶へ相転移してから 300 K 程度温度が上がってから  $\text{UO}_2$  の固溶反応が起こった。これは、 $\text{CeO}_2\text{-ZrO}_2$  は  $\text{CeO}_2$  固溶による一次の相転移であるのに対し、 $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$  は置換型反応である等のメカニズムの違いに起因していると考えられる。

## 4. その他・特記事項 (Others)

特になし