

課題番号 : 2024B-E03

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⁾ 生田 陸人³⁾ 山下 京也³⁾
水間 友清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, Rikuto IKUTA, Kyoya YAMASHITA, Tomokiyo MIZUMA, Tsuyoshi YAITA, Hajime TANIDA, Tohru KOBAYASHI, Masaaki KOBATA, Tatsuo FUKUDA

所属名 (日本語) : 1) 東京科学大学 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。

2. 実験 (目的, 方法) (Experimental)

ウラン試験専用のグローブボックス内に試料を密閉した加熱チャンバを設置した状態で X 線照射実験を行った。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。また、試料温度はグローブボックス外から二色放射温度計を用いて測定した。今期実施した試料組成は $\text{UO}_2 : \text{ZrO}_2 = 40 : 60 \text{ (wt\%)} = 23 : 76 \text{ (mol\%)}$ 、 $\text{CeO}_2 : \text{ZrO}_2 = 40 : 60 \text{ (wt\%)} = 33 : 67 \text{ (mol\%)}$ であった。回折画像を一次元プロファイル化して得られた XRD パターンのピークフィッティングから各温度における結晶構造を同定し状態図と比較した。XAFS スペクトルは吸収端近傍の形状変化から価数状態の定性的理解を、EAFS 振動から金属-酸素原子に関する局所構造を解析した。

3. 結果と考察 (Results and Discussion)

$\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$ 試料の XRD スペクトル解析から、 ZrO_2 単斜晶→正方晶の相転移が確認された。相転移後は UO_2 立方晶のピークパターン (111、200) および ZrO_2 正方晶のピークパターン (101、110、002) が明瞭にみられた。ピークフィッティングからそれぞれの格子定数をもとめ体積に換算し温度に対してプロットしたところ、約 1850 K 以上で UO_2 の体積減少が確認された。これは $\text{ZrO}_2\text{-UO}_2$ 固溶反応が進んだことによるものと考えられる。前期に行った $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$ 試験でも 1800 K 以上で UO_2 立方晶の格子定数が減少することが確認された。 $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$ 擬二元系状態図では立方晶との相境界線が 1800 K 近傍で平らになっている。このことから、立方晶への ZrO_2 固溶が起りやすい温度域であることが推定されて、実験結果と整合している。一方、 $\text{CeO}_2\text{-ZrO}_2$ 試料では XRD 解析の結果から 2200 K 以上で螢石型立方晶に類似した準安定相 $\kappa\text{-CeZrO}_4$ のパターンが観察された。一次元プロファイル化した XRD パターンには反映されない程度の薄く細い回折リングであったため、 $\kappa\text{-CeZrO}_4$ の結晶構造を用いて XANES スペクトルを多重散乱理論解析ソフトウェア (FEFF9.6) で計算し、測定で得られた XANES スペクトルと比較した。その結果、螢石型立方晶である $(\text{Ce, Zr})\text{O}_2$ に比べて $\kappa\text{-CeZrO}_4$ はホワイトピークがつぶれたような形状になる特徴が酷似しており、回折像とあわせて準安定相が形成されたと考えられる。 ZrO_2 は UO_2 に比べて CeO_2 との反応は酸素分圧に対する感度が高いことや、

複雑な原子構造をとる傾向があることが改めて確認された。

4. その他・特記事項 (Others)

特になし